

# 開発成果報告書

## 放射能分析用

しいたけ認証標準物質(粉末状, 高濃度)

JSAC 0774

JSAC 0775

JSAC 0776

2014年10月15日

公益社団法人 日本分析化学会

## 目 次

	頁
1. はじめに	1
2. 開発の経緯	1
3. 計量トレーサビリティ	2
4. 候補標準物質の調製	4
5. 均質性の評価	5
6. 共同実験の報告結果及び特性値の決定	12
7. 不確かさの算出	13
8. 標準物質の利用	18
9. 認証書	19
10. 結語	19
添付資料 1 : 共同実験参加試験所が使用した参照標準の概略図	21
添付資料 2 : しいたけ試料の経緯について	22
添付資料 3 : 共同実験参加試験所の測定条件と結果	24
添付資料 4 : 共同実験参加試験所のその他測定条件	31
添付資料 5 : 共同実験参加試験所からのその他の情報	35
添付資料 6 : Cs-134とCs-137測定値の関係及び試験法による測定値の差異について	51
添付資料 7 : 報告された $\gamma$ 線スペクトル例	53
添付資料 8 : 認証書	61

# 開発成果報告書

## 放射能分析用 しいたけ認証標準物質 JSAC 0774, 0775, 0776

### 1. はじめに

東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故により発生した放射性物質による環境汚染の広がり、国民生活の様々な側面に大きな影響を与えている。土壌表面に降下した放射性物質は、表流水の移動などに伴って分布状態を変え、住環境における外部被ばく線量に影響している。また、農地やその周辺に降下した放射性物質は、農作物などに取り込まれて国民の内部被ばく線量の上昇を招く可能性が指摘されている。土壌などの環境試料や食品中の放射性物質の量を正確に、かつ、迅速に測定する技術の開発は、放射能計測分野に求められている火急の使命である。特に食品分析については、より微弱な放射能を定量することが社会的なニーズとなっている。

分析値の信頼性を確保するには、測定対象物質の分析値を、類似の組成を持ち計量トレーサビリティが取れた標準物質の分析値と比較することが必要である。このため日本分析化学会では、2011年度から標準物質委員会での議論や震災対応WGの方針等を踏まえ、原発事故対応支援を考慮した放射能分析用標準物質の作製を開始し、すでに2012年6月1日に土壌標準物質の供給を行っている。

危急の対応が必要の中、2012年6月に放射能測定用標準物質開発が独立行政法人科学技術振興機構（以下JSTと呼ぶ）の研究開発事業（先端計測分析技術・機器開発プログラム）の一つに採択され、武蔵大学 薬袋佳孝教授をチームリーダーとして関連の標準物質開発を継続・促進することとなった。2012年度前期には、9月の生産時期に間に合うように玄米標準物質を、後期には牛肉認証標準物質を開発した。2013年度以後は、大豆、しいたけ等の標準物質の開発を行ってきた。本報告は、しいたけ認証標準物質（高濃度）の開発について成果をまとめたもので、放射能濃度の認証値は次のとおりである。特性値は関連分野の熟練試験所による共同実験方式で決定された。

Cs-134	(225 ± 15) Bq/kg	(k=2)
Cs-137	(533 ± 34) Bq/kg	(k=2)
K-40	(633 ± 50) Bq/kg	(k=2)

### 2. 開発の経緯

（公社）日本分析化学会 標準物質委員会では、渋川委員より震災対応WGの方針を踏まえ、原発事故対応支援を考慮した放射能分析用標準物質の作製の提案がなされた。平井委員が候補標準物質の調達を行うとともに、「放射能標準物質作製委員会」が平井委員長を中心に発足し土壌認証標準物質が開発された。その後、JSTの研究開発事業（先端計測分析技術・機器開発プログラム）「放射線計測領域」の平成24～25年度の開発課題「放射能環境標準物質の開発」、及び平成26年度は継続課題として採択され、武蔵大学 薬袋教授を

リーダーとし、環境テクノス(株) 岩本氏をサブリーダーとする産学協同の体制が構築された。土壌標準物質の開発を行った放射能標準物質作製委員会も継続し、両者は連絡を密にして、これらの標準物質開発に携わった。これまで、玄米認証標準物質、牛肉認証標準物質（低濃度・高濃度）、大豆認証標準物質（低濃度・高濃度）及びしいたけ認証標準物質（低濃度）の開発を終了した。今回はしいたけ認証標準物質の内、高放射能濃度物質を開発するもので、環境テクノス(株)にて候補標準物質の調製、東京都市大学原子力研究所にて放射能測定、埼玉大学においてカリウム化学分析による均質性試験が実施された。

測定方法としては、我が国における放射能分析の代表的な指針である“平成4年改訂 文部科学省 放射能測定シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリ」”によることにした。

共同実験に参加した機関のリストを表1に示す。

表1 参加試験所リスト（順不同）

東京都市大学原子力研究所
東京都市大学工学部
明治大学 理工学部
京都大学原子炉実験所
東京大学アイソトープ総合センター
(公財)日本分析センター
(公社)日本アイソトープ協会
(一財)日本食品分析センター
(独)放射線医学総合研究所
(独)日本原子力研究開発機構
(独)農業環境技術研究所
エスエス環境株式会社
株式会社環境総合テクノス
日本ハム株式会社中央研究所

### 3. 計量トレーサビリティ

表2に参加試験所が用いた標準線源とその合成標準不確かさを示す。

表2 参加試験所が用いた標準線源と校正法に起因する合成標準不確かさ

Lab 番号	標準線源	検出効率校正の 相対標準不確かさ(%)
1	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP	2.35
2	Eu-152 線源及び K-40 (KCl)	2.9

4	日本アイソトープ協会製 混合核種点線源 (MX402 53) (U8 容器) 及び日本アイソトープ協会製 CS031U8PP	2.35
5	日本アイソトープ協会製 9核種混合放射能標準ガンマ体積線源 (U8 容器)	ピーク効率の校正値として, 1.62 (Cs-134) 1.33 (Cs-137) 1.49 (K-40)
6	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2.35
8	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2.35
10	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2.35
11	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2.4
12	JSAC 0771 (しいたけ (低濃度) 認証標準物質)	Cs-134 4.33 Cs-137 4.26 K-40 3.74
14	Cs-134 及び Cs-137 : 値付けされた溶液を秤量し, 100 mL の水に滴下して作成 K-40: 容量分析用水酸化カリウム溶液 100 mL 標準及び候補標準物質共に PE 製広口ビンに充填, ビンの側面を Ge 検出器 (横型) の前面アクリルキャップに密着させて測定	2.0 (Cs-134) 2.0 (Cs-137)  K-40 については学術的核データの 不確かさと計数誤差を合成した. 1.1 (K-40)
15	日本アイソトープ協会製 9核種混合標準溶液 (MX010-0017) を, アルミナ粉末と混合し, U8 容器に 50 mm 高さで充填して作成	2.7
16	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2.35
17	Eu-152 線源及び K-40 (KCl)	2.9 (Lab2 と同じ値を用いた)
18	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2.5

ピーク効率の校正の標準不確かさは, 不確かさの報告がある場合はその値 (Lab. 5, 11, 14 の Cs, 15), 標準線源が報告されている場合はその拡張不確かさを包含係数 ( $k=2$ ) で

割った値 (Lab.1, 4, 6, 8, 10, 16, 18) を用いた。KOH との比較測定の場合は、K-40 核データから求めた標準不確かさ 1.1 %を用いた (Lab. 14 の K-40)。Eu-152 線源を用いて効率曲線 (直線近似) を求め、KCl を用いて校正した場合は、効率曲線の標準不確かさを

を  $\sqrt{\frac{1}{N-2} \sum \varepsilon_i^2}$  から計算し、K-40 の標準不確かさ 1.1 %と合成して求めた (Lab. 2, 17)。

ここで、 $\varepsilon_i$  は直線近似の誤差 (%) で、N は測定点の数である。認証標準物質と比較測定が行われたときは、認証値の相対合成標準不確かさを用いた (Lab.12)。

報告データは添付資料 3~5 を参照のこと。添付資料 1 に、共同実験における放射能測定トレーサビリティの概念を、参考のため図示した。

#### 4. 候補標準物質の調製

##### (1) 概要

乾燥しいたけを用いて調製した。採取された放射性物質で汚染されたしいたけは、比較的放射能濃度が高いため、候補標準物質は汚染試料に非汚染試料を希釈用として混合して調製することとした。汚染試料及び非汚染試料ともそれぞれ粉砕、分級され、混合の後、瓶詰、滅菌を得て、候補標準物質が調製された。非汚染試料については、しいたけの形状を保ったもの、スライス状のもの両方を用いたが、区別なしに処理された。調製工程の詳細についてはしいたけ認証標準物質 (粉末状、低濃度) の開発成果報告書及び本報告書の添付資料 2 を参照してほしい。

##### (2) 調製工程の概要

低濃度試料と同様な方法にて汚染しいたけ試料を調製し、1 mm 以下かつ微粉 (目安：63  $\mu$  m 未満) を少なくした試料を調製目標とし、汚染しいたけ、非汚染しいたけ試料をそれぞれ粉砕・分級を行った試料を用い、一括混合した。最終的な回収量は、17.5 kg であった。概要を図 1 にまとめた。

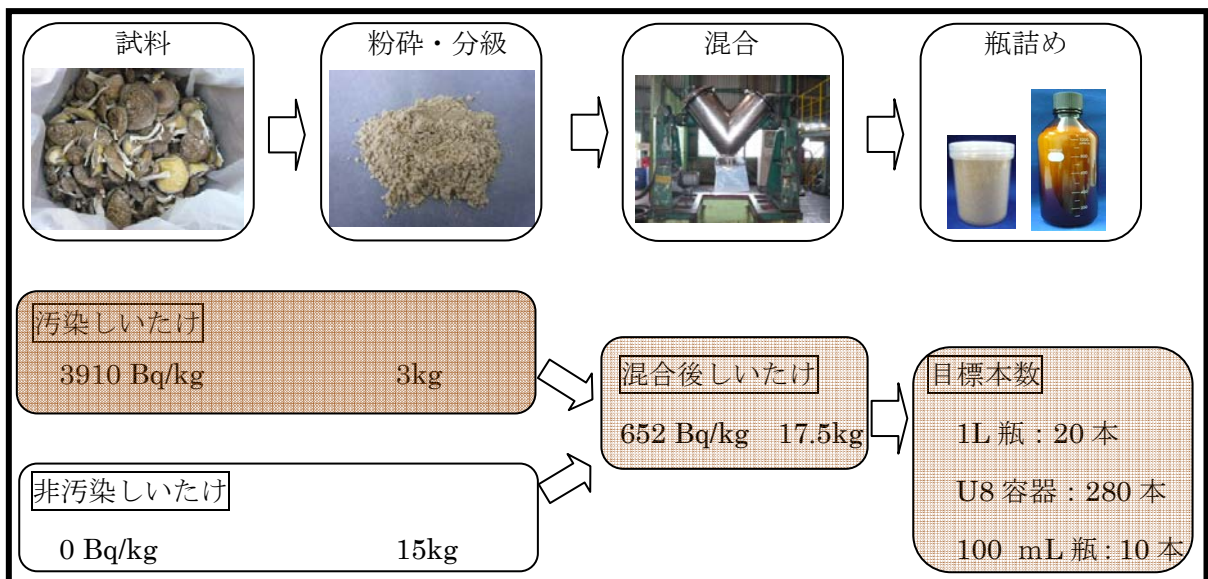


図 1 高濃度試料の調製

#### 瓶詰め：

しいたけ認証標準物質（低濃度）では U8 容器への充てん量を 30.0 g としたが、高濃度試料では、故意に振動を与えると空隙が生じる場合が認められ、一度空隙ができてしまうと反転などで充てん高さを 50 mm に戻そうとしても困難であったため、充てん量を 35.0 g とした。結局、瓶詰めされた本数は下記のとおりである。

しいたけ高濃度試料	作製本数
U8 容器 (35.0 g)	280 本
100 mL 瓶 (約 35 g)	10 本
1L 瓶 (約 350 g)	20 本

#### 滅菌：

U8 容器，100 mL 容器，1 L 容器への瓶詰め後，Co-60  $\gamma$  線 10kGy/h，前面 1 時間，後面 1 時間，計 2 時間，トータル 20 kGy の照射条件で滅菌処理を行った。

#### (3) 乾燥による質量の減少について

4 試料について各々 2 回，乾燥による質量の減少を測定した（厚生労働省監修，食品衛生検査指針理化学編における食品の水分率の公定試験法準拠，105℃・5 時間）。結果を表 3 に示す。平均すると 6.4 % 程度の質量の減少が認められた。

表 3 105 ℃，5 時間の乾燥による質量減少

試料番号	乾燥前質量(A) g	乾燥後質量(B) g	減量(A-B) g	(A-B)/A %
35-1	6.005	5.620	0.385	6.41
35-2	6.004	5.619	0.385	6.41
99-1	6.007	5.623	0.384	6.39
99-2	6.000	5.618	0.382	6.37
179-1	6.001	5.618	0.383	6.38
179-2	6.008	5.618	0.390	6.49
243-1	6.004	5.619	0.385	6.41
243-2	6.003	5.614	0.389	6.48
			平均	6.42

## 5. 均質性の評価

### (1) 概要

放射能測定及び化学分析による均質性評価を行った。均質性評価のための試料は，全試料からほぼ等間隔にそれぞれ 12 試料をサンプリングした。放射能測定では測定時間を 24 時間（86400 秒）とした。放射能測定は東京都市大学原子力研究所，化学分析は埼玉大学において実施された。

### (2) 放射能測定による均質性試験

Cs-134，Cs-137 及び K-40 の放射能は，それぞれ 604 keV，661 keV，1460.8 keV のピークを用いて測定された。測定は 6 月 21 日から 7 月 4 日にかけて測定された。

均質性試験の解析は十分な併行精度が確保できる場合次のように評価できる。すなわ

ち、 $s_{bb}$  を均質性標準偏差、 $s_{b+r}$  を複数試料を測定したときの測定値の標準偏差、 $s_r$  を併行精度（測定の繰返し標準偏差）とすると、 $s_{bb}$  は次式で求めることができる。

$$s_{bb}^2 = s_{b+r}^2 - s_r^2$$

$s_{bb}^2$  が負になる場合は、便宜上その絶対値の平方根に負号をつけて  $s_{bb}$  を表示している。

表 4 に Cs-134 及び Cs-137 の評価結果、表 6 に K-40 の評価結果を示した。 $s_{b+r}$  (%) の計算では測定で得られたカウント数の相対標準偏差を用いた。ネットカウントの平方根及びベースラインの誤差を含めた計数誤差をそれぞれ計数誤差 1 と計数誤差 2 と表示している。放射能測定の併行精度は計数誤差として測定カウント数の平方根で与えられることが分かっている。ピークの面積はコベル法によって計算されており、測定値の計数誤差を表す場合はベースラインカウント数の計数誤差を加えているが、この計数誤差を  $s_r$  に用いると均質性を過小評価することが懸念される。計数誤差 1 は測定対象からの信号（カウント数）の理論的な誤差に相当し、推定される最小の併行精度と考えられる。そこでここではベースラインによる計数誤差を含めないで単にネットカウントの平方根から計数誤差を計算し、それを用いて計算した  $s_{bb}$  を不確かさとした。



表4 Cs-134 及び Cs-137 の放射能測定による均質性試験結果

単位：カウント数

試料番号	Cs-134 ネットカウント	計数誤差 1	計数誤差 2	Cs-137 ネットカウント	計数誤差 1	計数誤差 2
5	5056.8	71.11	77.10	12152.9	110.24	113.00
30	5048.9	71.06	77.30	12190.0	110.41	112.90
55	4952.9	70.38	76.30	12018.6	109.63	112.50
80	5071.3	71.21	77.00	12020.0	109.64	112.70
105	4890.9	69.93	75.60	11908.6	109.13	112.10
130	4867.8	69.77	76.10	11860.4	108.91	111.90
155	4991.9	70.65	76.60	11731.3	108.31	111.50
180	4937.7	70.27	76.60	11835.4	108.79	112.10
205	5088.0	71.33	77.40	11817.7	108.71	111.90
230	4997.0	70.69	76.70	11753.4	108.41	111.70
255	5239.6	72.39	78.00	12176.0	110.34	113.30
280	4975.7	70.54	76.60	12147.7	110.22	113.40
AVERAGE	5009.88	70.78	76.78	11967.67	109.40	112.42
STDEV	100.38			171.00		
$s_{b+r}(\%)$	<b>2.00</b>			<b>1.43</b>		
$s_r(\%)$		<b>1.41</b>	1.53		<b>0.91</b>	0.94
$s_{bb}(\%)$		<b>1.42</b>	-1.29		<b>1.10</b>	1.08

表 5 K-40 の放射能測定による均質性試験結果

単位：カウント数

試料番号	N	Nb	N'	Nb'	$\frac{\sqrt{(N+Nb+N'+Nb')}}{((N-Nb)-(N'-Nb'))}$	ネット カウン ト	計数 誤差 1	計数 誤差 2
5	1064	59.40	106.80	8.20	3.88%	906.00	30.10	35.19
30	1089	41.80	106.80	8.20	3.72%	948.60	30.80	35.30
55	1040	53.00	106.80	8.20	3.91%	888.40	29.81	34.76
80	1004	52.00	106.80	8.20	4.01%	853.40	29.21	34.22
105	988	47.40	106.80	8.20	4.03%	842.00	29.02	33.92
130	1028	53.90	106.80	8.20	3.95%	875.50	29.59	34.60
155	1005	52.00	106.80	8.20	4.01%	854.40	29.23	34.23
180	1036	55.70	106.80	8.20	3.94%	881.70	29.69	34.74
205	1027	58.00	106.80	8.20	3.98%	870.40	29.50	34.64
230	956	43.60	106.80	8.20	4.10%	813.80	28.53	33.39
255	1052	56.60	106.80	8.20	3.90%	896.80	29.95	34.98
280	1037	32.50	106.80	8.20	3.80%	905.90	30.10	34.42
AVERAGE	1027.17	50.49	106.80	8.20	<b>3.9%</b>	878.08	29.63	34.53
					STDEV	35.25		
					$s_{b+r}(\%)$	<b>4.01</b>		
					$s_r(\%)$		<b>3.37</b>	3.93
					$s_{bb}(\%)$		<b>2.17</b>	0.80

表 5 の N, Nb は、それぞれ試験試料のベースラインを含むピークのカウント数及びベースラインのカウント数で、N', Nb' は別途測定された測定環境におけるバックグラウンドによる信号の全体及びベースラインのカウント数である（添付資料 3 を参照）。

K-40 の測定値の計数誤差（計数誤差 2）は一般に次式で表される。

$$K-40 \text{ の計数誤差 } 2 = (N+Nb+N'+Nb')^{0.5} / ((N-Nb)-(N'-Nb'))$$

計数誤差 1 で計算した結果も含めて、表 5 に計算結果を示すが、計数誤差 1 及び計数誤差 2 を用いた計算でそれぞれ 2.17 %、0.80 % という値が得られた。

### (3) K 元素化学分析による均質性試験

#### 1) 試薬

硝酸（68 % TAMAPURE-AA-100） 多摩化学工業製  
過酸化水素水（30 % 精密分析用） 和光純薬製  
カリウム標準液（1000 ppm 原子吸光用） 関東化学工業製  
イットリウム標準溶液（1000 ppm 原子吸光用） 関東化学工業製

#### 2) 試料溶液調製法

- ① しいたけ標準物質（粉末）をおよそ 0.1 g 精秤し、加熱分解容器に入れ、硝酸 7 mL と過酸化水素水 1 mL を加える。

- ② マイクロ波加熱分解装置（マイルストーンゼネラル社製 ETHOS PRO）で、以下の温度プログラムにより加熱分解後、分解溶液を PFA 製 100 mL ビーカーに移し、200 °C のホットプレート上で蒸発乾固直前まで加熱する（表 6）。

表 6 マイクロ波加熱分解温度プログラム

Step	時間(分)	出力(W)	温度(°C)
1	2	1000	50
2	3	0	30
3	25	1000	190
4	1	0	160
5	4	1000	190
6	15	1000	190
合計 55 分（終了後の排気 5 分を含む）			

- ③ 1 %硝酸溶液 10 mL を加え、160 °C のホットプレートで 30 分間加熱して残渣を溶かし、メンブランフィルター（OMNIPORE：孔径 0.45 μm，直径 47 mm，メルクミリポア製）を用いて吸引ろ過後、内部標準として 10 ppm Y 溶液を 0.05 mL 加え、1 %硝酸溶液で 50 mL 定容として、測定溶液とする。

### 3)カリウムの測定

上記の方法で調製したしいたけ分解溶液中のカリウム濃度の測定には、ICP-AES（エスアイアイ・ナノテクノロジー(株)製 SPS 3100）を用いた。測定条件を以下に示す。

- ・ RF 出力・・・1.2 kW
- ・ Ar ガス流量
  - プラズマガス・・・15.0 L/min
  - 補助ガス・・・0.5 L/min
  - キャリアガス・・・0.5 L/min
- ・ サンプル導入量・・・2.5 mL/min
- ・ 測定波長 K：769.92 nm  
Y：371.03 nm（内標準）

得られた結果から、以下の式によってしいたけ試料中の K 濃度を算出する。

しいたけ試料中の K(mg/g) = 測定溶液中の K 濃度(mg/L) × 0.05 (L) / 試料質量(g)  
結果を表 7 に示した。表 8-1 及び表 8-2 には一元配置分散分析による評価結果を示す。

表7 K元素の化学分析結果

試料番号	試料重量 (g)	試料中の濃度 (mg/g)	平均値 (mg/g)	標準偏差 (mg/g)
4	0.1737	19.419	18.903	0.729
	0.1364	18.387		
31	0.1799	19.455	19.173	0.400
	0.1018	18.890		
54	0.1179	19.801	19.794	0.010
	0.1030	19.786		
81	0.1048	19.385	19.140	0.346
	0.1005	18.896		
104	0.1160	18.802	18.714	0.124
	0.1092	18.626		
129	0.1221	19.353	19.544	0.270
	0.1319	19.735		
154	0.1173	19.190	19.272	0.116
	0.1068	19.354		
181	0.1204	18.891	19.289	0.562
	0.1114	19.686		
204	0.1279	18.518	19.047	0.747
	0.1611	19.575		
229	0.1034	19.454	19.335	0.168
	0.1244	19.216		
254	0.1103	20.050	19.975	0.105
	0.1162	19.901		
279	0.1514	19.686	20.034	0.492
	0.1647	20.383		

表 8-1 分散分析結果  
採用したデータの平均と分散

試料番号	反復数	合計	平均	分散 (各試料)
4	2	37.806	18.903	0.532
31	2	38.345	19.173	0.160
54	2	39.587	19.794	0.000
81	2	38.280	19.140	0.120
104	2	37.428	18.714	0.015
129	2	37.428	18.714	0.015
154	2	38.544	19.272	0.013
181	2	38.577	19.289	0.316
204	2	38.093	19.047	0.558
229	2	38.670	19.335	0.028
254	2	39.951	19.975	0.011
279	2	40.069	20.034	0.242
平均値			19.282	

表 8-2 分散分析表

変動要因	変動	自由度	分散 (MS)	観測され た分散比	P-値	F 境界値
試料間 (among)	4.376	11	0.398	2.374	0.076	2.717
試料内 (within)	2.011	12	0.168			
合計	6.387	23				

分散分析表から試料間標準偏差は次式で得られる.

$$s_{bb}^2 = \frac{MS_{among} - MS_{within}}{n} = 0.115$$

ここで,  $MS_{among}$  は試料間分散,  $MS_{within}$  は試料内分散,  $n(=2)$  は反復数を表す. JIS Q 0035

7.9 項に従い均質性標準偏差  $u_{bb}$  を次式により計算する.

$$u_{bb} = \sqrt{s_{bb}^2 + \frac{s_r^2}{n}} = 0.446(\text{mg/g}) = 2.31(\%)$$

ここで,  $s_r^2 = MS_{within}$  である.

#### (4) 均質性試験に基づく不確かさの推定

放射能測定による均質性評価では過小評価を避けるために計数誤差 1 を用いた  $s_{bb}$  の値を用いる。表 4 から計数誤差 1 を用いた Cs-134 及び Cs-137 の均質性の相対不確かさはそれぞれ 1.42 %、1.10 % と類似する値が得られたが、大きい方の値 1.42 % を Cs-134 及び Cs-137 の共通の均質性不確かさとして使用する。

K-40 の均質性不確かさについては放射能測定で 2.17 %、化学分析で 2.31 % とほぼ同一の値となり、いずれの方法でも十分な併行精度が得られていると考えられる。カリウム中の K-40 の天然存在比は一定と考えられるので、大きいほうの値 2.31 % を K-40 の均質性不確かさとする。

### 6. 共同実験の報告結果及び特性値の決定

共同実験においては、候補標準物質を環境テクノスで U8 に詰めたものを測定した。参加試験所の測定値と測定条件をまとめて添付資料 3, 4, 5 に示す。表 9 に、報告値と  $z$  スコア計算結果をまとめた。 $z$  スコアは従来法 (Classic) 及びロバスト法 (Robust) により求めた。ここで

*Average*: 平均値

*SD* : 室間再現標準偏差

*RSD*:  $100 \times SD / Average$

*Median*: 中央値

*NIQR* : 標準化四分位範囲 (0.7413×四分位範囲で、ロバストな室間再現標準偏差)

*RNIQR*:  $100 \times NIQR / Median$

Classic  $z$  score :  $(x - Average) / SD$   $x$  は各試験所の報告値

Robust  $z$  score :  $(x - Median) / NIQR$

従来法による  $z$  スコアで 3 を越える報告値がなかったためデータの棄却は行わなかった (Cs-134 と Cs-137 の報告値の分布状況は添付資料 6 のユードン図を参照)。添付資料 3, 4, 5 に見るように測定条件で技術的に問題と思われる試験所はなく、本共同実験の報告値の評価には従来法による平均と標準偏差を用いる。したがって、本しいたけ認証標準物質の特性値は平均値とした。

JIS Z 8404-1:2006 (ISO 21748:2010) 「測定の不確かさ—第 1 部：測定の不確かさの評価における併行精度、再現精度及び真度の推定値の利用の指針」に基づき、次項で述べる不確かさに加え、室間再現標準偏差 (表 6 の *SD*) も「もう一つの不確かさ」として認証書に記載する。

注：JIS Z 8404-1 は現 ISO の旧版 ISO/TS 21748:2004 の翻訳規格。

表中の測定値では報告値をそのまま記載した。試験所番号(Lab)について一部不連続となっているのは、既開発の土壌、玄米標準物質の際の共同実験参加試験所の番号を引き継いでいるためである。

試験所によっては、均質性試験とかねて複数の候補標準物質を測定していただいた。その場合は、事前に特定した試料の結果を共同実験用に採用した。添付資料 6 に、Cs-134 と Cs-137 の相関をユードン図で示した。添付資料 7 には、報告された  $\gamma$  線スペクトルの一部を示した。

表9 報告値及びzスコア計算値

報告値の単位：Bq/kg

lab	核種	z score		核種	z score		核種	z score	
	Cs-134	classic	robust	Cs-137	classic	robust	K-40	classic	robust
1	238.2	1.74	1.72	540.4	0.61	0.66	698.6	1.67	4.39
2	212.8	-1.56	-1.20	531.8	-0.10	-0.49	649.1	0.42	0.74
4	220	-0.63	-0.37	510	-1.91	-3.39	620	-0.32	-1.40
5	224.4	-0.06	0.13	538.0	0.41	0.33	643.2	0.27	0.31
6	220	-0.63	-0.37	529.2	-0.32	-0.83	627	-0.14	-0.89
8	222.7	-0.28	-0.06	523.3	-0.80	-1.62	640.1	0.19	0.08
10	229	0.54	0.66	542	0.74	0.87	646	0.34	0.51
11	222.7	-0.28	-0.06	535.8	0.23	0.05	627.8	-0.12	-0.83
12	221.0	-0.50	-0.26	535.1	0.17	-0.05	593.5	-0.99	-3.35
14	234	1.19	1.23	531	-0.17	-0.59	638	0.14	-0.08
15	233	1.06	1.12	552	1.57	2.20	670	0.95	2.28
16	233	1.06	1.12	546	1.08	1.40	644	0.29	0.36
17	213	-1.54	-1.18	510	-1.91	-3.39	523	-2.77	-8.55
18	223.8	-0.13	0.06	537.5	0.37	0.27	634.6	0.05	-0.33
データ数 p	14			14			14		
Average	224.83			533.01			632.50		
SD	7.70			12.07			39.51		
RSD	3.42			2.27			6.25		
SD/ $\sqrt{p}$	2.06			3.23			10.56		
RSD/ $\sqrt{p}$	0.91			0.61			1.67		
Median	223.25			535.47			639.05		
NIQR	8.71			7.52			13.57		
RNIQR	3.9			1.4			2.1		

## 7. 不確かさの算出

共同実験のデータ解析では多くの場合に測定方法に関する室間のかたよりは無視される。しかし、JIS Z 8404-1A.2.2において述べられるように、共同実験で推定されるかたよりの不確かさが無視できないときは不確かさのバジェット表に含む必要がある。したがって、ここでは、考えられる不確かさの要因を整理し、かたよりを与えると考えられる要因に対して不確かさを推定し、これを合成することにした。

文献によると、測定用試料調製、Ge半導体検出器のエネルギー及び検出効率校正、測定試料の測定、核データなどの要因が挙げられ、下記の(1)から(4)に示すように詳細な成分が議論されている。今回の共同実験において考慮が必要と考えた要因については説明を加え、結果として不確かさに含めた要因については(○)を記して示した。不確かさ要因の詳細については、文献参照のこと(C. Dovlete, P. P. Povinec: “Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements”, IAEA-TECDOC-1401, pp.103-126 (2004))。

### (1) 測定試料の調製

- ・分析種の損失及び／又は汚染

- ・ 試料質量又は容量
- ・ 試料の均質性 (○)
  - 5. 均質性評価において考察した.
- ・ 前濃縮操作

## (2) エネルギー及び検出効率校正

- ・ 測定時間内における機器の不安定性
- ・ エネルギー校正
- ・ 検出効率校正 (○)

信頼性の高い放射性核種の定量を行うためには、測定に用いる Ge 半導体検出器の検出効率を正しく校正する必要がある。Ge 半導体検出器の検出効率校正法として、点線源測定法、体積線源測定法、計算に基づく方法がある。点線源測定法、体積線源測定法ではそれぞれに対応した標準線源を用いることで国家標準との計量トレーサビリティが確保された校正が実現できる。K-40 の測定においては、放射性天然同位体の存在量が信頼できる国際的データベースとして知られているため、それを利用して校正することも可能である。

複数の核種を含む標準線源を用いて広いエネルギー範囲で関数フィッティングすることにより検出効率の校正を行う。これによる不確かさは通常小さくここでは無視した。この根拠については土壌認証標準物質の開発成果報告書の添付資料 9 に示したので参考にされたい (開発報告書は次のホームページからダウンロードできる。

<http://www.jsac.or.jp/srm/srm.html>)。標準線源では含まれる核種毎に不確かさが与えられているが、多くの試験所で用いられている日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器) では Cs-137 に対して 5.0 %、ないしは 4.7 % と記載されており、該当するエネルギー範囲ではこのこれらの値はほぼ等しい。したがって、標準線源を用いた参加試験所の校正法に起因する相対標準不確かさとしては、Cs-137 核種に与えられた不確かさを包含係数 2 で割った値を用いた。また、カリウム元素を用いて校正を行った試験所の不確かさは核データベースから見積もった。

共同実験における検出効率校正における不確かさは、各参加試験所の校正法に起因する相対標準不確かさ (表 2 に示した) を二乗平均し、その平方根として見積もった。

## (3) 試料の測定

- ・ 試料と標準間の測定ジオメトリーの違い
  - すべての試験所においてピーク効率の校正や比較校正に用いる標準線源と同じタイプの試料容器が用いられているのでジオメトリーの違いによる不確かさは無視できるとした。
- ・ 偶発同時計数
- ・ サム効果 (真の加算同時計数)
  - 今回の対象核種では Cs-134 が該当する。Lab2, Lab17 を除いて多くの試験所では、ソフトウェアに含まれる機能を用いて補正を行っている。
  - Lab 14 の試験所では、Cs-134 を標準線源に用いているので補正は不要であった。
  - このようにサム効果のかたよりは適切に補正されているためばらつきは共同実験の不確かさに含まれると考え、ここでは不確かさの要因に含めない。
- ・ 不感時間の影響



- ・壊変時間（サンプリングから測定までの冷却期間及び測定期間）の影響
- ・試料の自己吸収（○）

もし測定される試料の組成と密度が検出効率校正用標準線源と異なる場合、検出効率に対する自己吸収補正が必要となる。それらの補正は、試料のジオメトリー、組成及び密度、そして検出器パラメータに依存する。この補正は大容量、高原子量、高密度試料、そして低エネルギー光子に対して大きくなる。多くの試験所では日本アイソトープ協会のアルミナ媒質の標準を用いており、本候補標準物質では 35.0 g を密度 0.35 g/cm<sup>3</sup>、高さ 50 mm で充填している。自己吸収の補正では、充てん物質として、水、土壌、寒天等異なる物質が選択されているが、材質による違いは大きくない。これまで開発した認証標準物質と比較して、標準と測定試料間の密度差が大きいことが特徴的である。文献によると、試料マトリックスの主成分元素が既知の場合、自己吸収補正係数の相対不確かさは 1%以下（エネルギー60 keV 以上の $\gamma$ 線に対し）とされるので、ここでは 1.00%とした。

- ・ピーク面積計算
- ・計数の統計

計数による不確かさは主要な要因の一つである。特に検出効率が小さい K-40 核種については環境によるバックグラウンドの信号が不確かさの大きな要因となっている。この要因による不確かさが他の要因と重複して観測されるが、ここでの共同実験では報告値の標準偏差に含まれるものとしてかたよりとは考えないため直接に合成する要因には含めない。

#### （4）核データ

- ・半減期による不確かさ
- ・ $\gamma$ 線放出率による不確かさ

核データは 3桁～4桁の精度を持っているため不確かさの要因としては無視した。

#### （5）共同実験の不確かさ（○）

報告値の標準偏差としては、室間再現標準偏差と NIQR による標準偏差が候補となるが、参加した試験所数が限られるのでここでは単純な標準偏差である室間再現標準偏差を用い、これを参加試験所数の平方根で割り、平均値の標準偏差として不確かさに合成する。

結論として、本しいたけ認証標準物質の合成標準不確かさは、共同実験の平均の標準不確かさ、参加試験所が用いた検出効率の校正の標準不確かさの二乗平均、自己吸収補正の標準不確かさ、均質性試験から推定された標準不確かさを合成して算出した。拡張不確かさを算出する包含係数として  $k=2$  を用いた。

表 10 不確かさの要因と算出値

不確かさ要因	Cs-134 (%)	Cs-137 (%)	K-40 (%)
共同実験	0.91	0.61	1.67
検出効率校正	2.60	2.58	2.49
自己吸収補正	1.00	1.00	1.00
均質性	1.42	1.42	2.31
合成標準不確かさ	3.26	3.17	3.91
拡張不確かさ ( $k=2$ )	6.52	6.34	7.83
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
拡張不確かさ ( $k=2$ )	14.65	33.78	49.52

認証書に記載する拡張不確かさは次の通り.

**Cs-134      15 Bq/kg**

**Cs-137      34 Bq/kg**

**K-40        50 Bq/kg**

ここで、拡張不確かさは、合成標準不確かさに信頼の水準約 95 % に相当する包含係数  $k=2$  を乗じた値である。

図 2, 図 3, 図 4 に各核種の認証値と測定値の分布を示す。一部の測定値に付されたエラーバーは報告された拡張不確かさである。

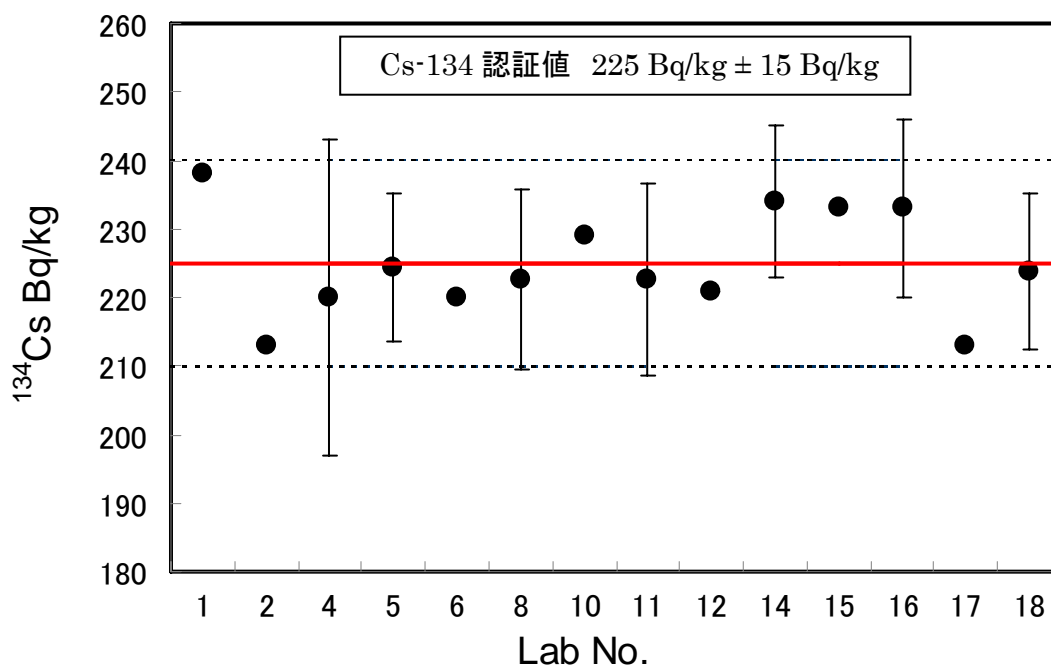


図 2 Cs-134 の認証値と測定値の分布

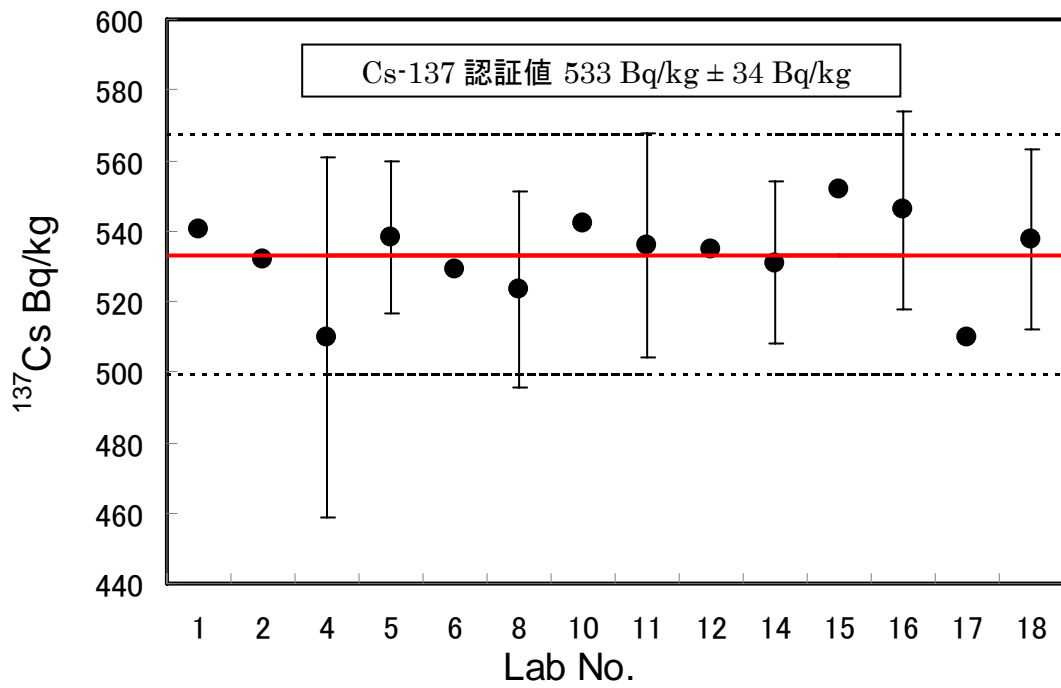


図3  $^{137}\text{Cs}$  の認証値と測定値の分布

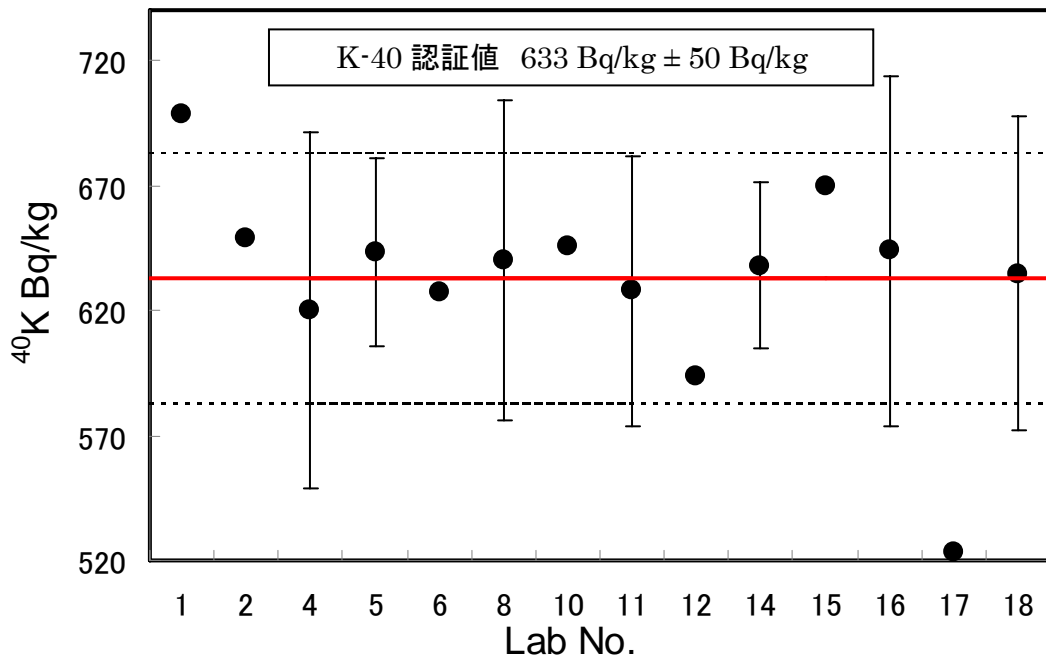


図4  $^{40}\text{K}$  の認証値と測定値の分布

## 8. 標準物質の利用

### (1) 標準物質の利用の目的

γ線スペクトロメトリーによる放射能分析の妥当性確認，測定器の精度管理などに用いることができる。

### (2) 使用上の注意

1. JSAC 0774 は，試料 35.0 g を U8 容器(内径 48 mm)に充てんした後，中蓋を入れ，上蓋で固定されている。容器を故意に振動・転倒させて試料を攪拌することを避ける。
2. U8 容器に充てんした試料の高さは 50 mm であるが，必要に応じて高さを測定することを推奨する。
3. JSAC 0775 及び JSAC 0776 は適切な放射能測定用の容器に詰めかえて用いる。採取量は 35 g 以上とし，測定容器に詰めた試料の質量を精確に測定し，記録する。
4. 測定容器に詰めかえる際は，あまり強く押し込まないように均質に充てんする。
5. 本標準物質は，放射性核種を含むため取扱いに注意し，廃棄の際には関連法規を遵守する。

### (3) 妥当性確認や測定器の精度管理への利用の仕方

このしいたけ認証標準物質には認証値の不確かさと所間（室間）再現標準偏差とが記載されている。そのため，本しいたけ認証標準物質を測定し，次のような手順を利用して分析能力の妥当性確認や測定器の精度管理に用いることができる。

拡張不確かさを推定する場合：

しいたけ認証標準物質を測定して測定値の不確かさを求めるには，本開発成果報告書における7節を参照することができる。Cs-134 と Cs-137 が測定対象核種である限り，試験所が必要とする手順での，本開発成果報告書との違いは，計数誤差と均質性の取扱いであろう。試験所は生産された多数の標準物質のうちの一つを測定するので，均質性についての配慮は不要である。

その他の要因については，本開発成果報告書の取扱いに準じて，あるいは必要なら文献値などを用いて算出することが可能であろう。

推定した拡張不確かさをを用いると，次の式から測定値の信頼性を評価することが可能である。 $E_n$  数の絶対値は，1 以下であることが望ましい。

$$E_n = (x - X) / (U_x^2 + U_X^2)^{0.5}$$

ここで  $x$  : 試験所の値  
 $X$  : 認証値  
 $U_x$  : 試験所の値の拡張不確かさ ( $k=2$ )  
 $U_X$  : 認証値の拡張不確かさ ( $k=2$ )

拡張不確かさをを用いない場合：

認証書の所間（室間）再現標準偏差 ( $SD$ ) を用いることができる。所間再現標準偏差は認証値決定のために共同実験に参加した試験所の測定値の平均値を基準として求めた標準偏差である。

一般に、試験所において標準物質を分析したとき、その結果と認証値との差は所間標準偏差の 2 倍 ( $2SD$ ) 以内にあることが望ましい。これは技能試験において次式で求める  $z$  スコアの絶対値が 2 以下に入ることと同等である。

$$z = (x - X) / SD$$

また、スクリーニング法などにおける測定器の校正や日常管理に用いることが可能である。

## 9. 認証書

添付資料 8 に掲載する。

## 10. 結 語

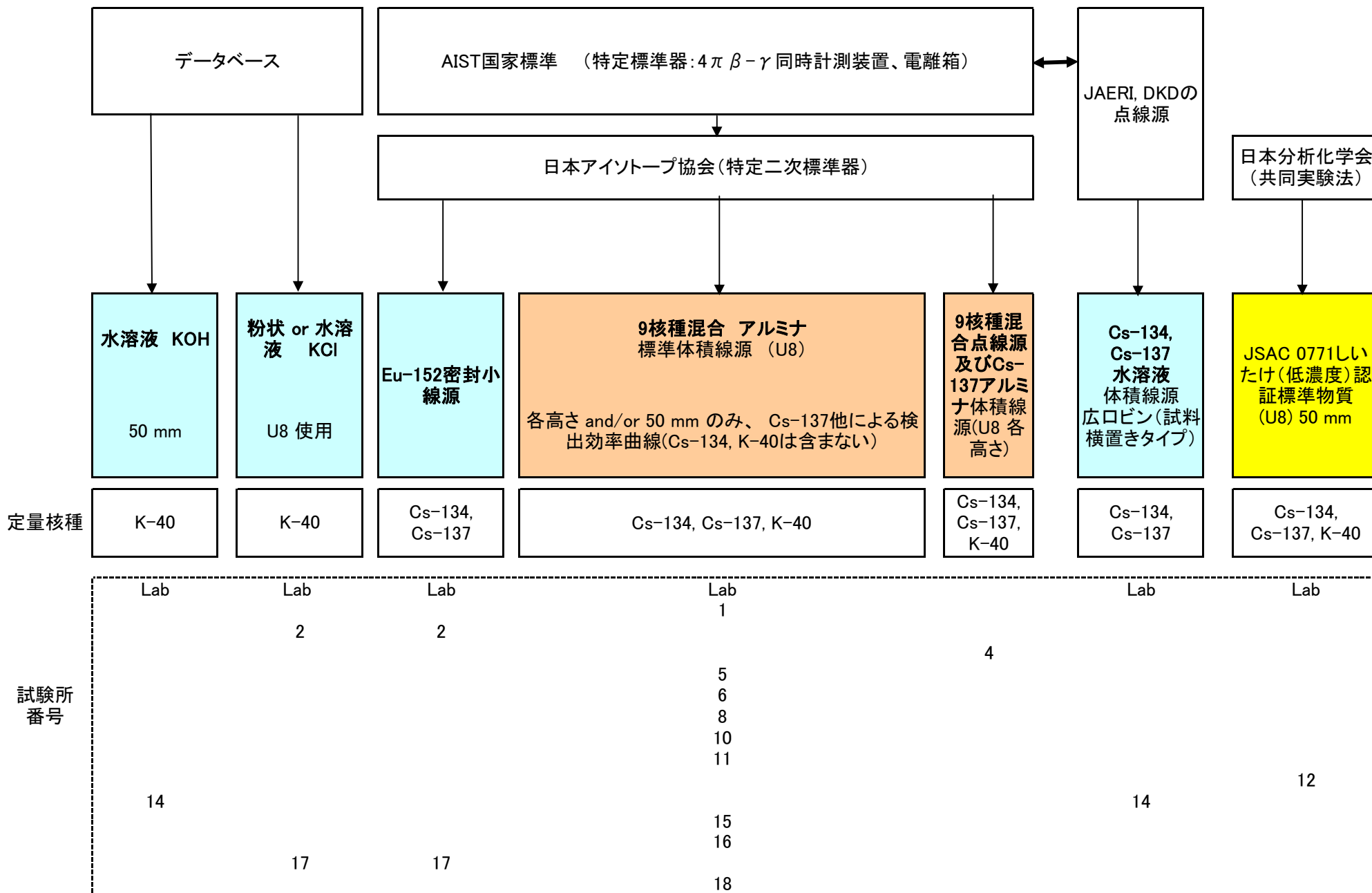
ここに放射能分析用しいたけ認証標準物質（粉末状、高濃度）JSAC 0774, 0775, 0776 を開発・作製した。

原子力発電所の事故による食生活への放射能影響を未然に防ぐための努力は引き続き必要な状態である。放射能分析の精確さはその基本となるものであり、特に日本人の食生活の安全のため、しいたけ認証標準物質が分析値の信頼性の確保に有効な役割を果たすことが期待される。

業務計画の立案と検討、製品の試作、そして共同実験への参加、データ解析その他多くの面でこの開発事業を支えていただいた関係者各位に深く感謝する。

## 添 付 資 料

添付資料1 参加試験所が使用した参照標準(標準線源)の概略図



## 添付資料 2

### しいたけ試料の経緯について

環境テクノス株式会社

#### 1. しいたけ原料

##### (1) 概要

しいたけ（低濃度）の開発成果報告書 添付資料 2 に記載したように、放射能標準物質調製試料の原料として表 1 及び表 2 のしいたけを調達した。

しいたけ（低濃度）用には、表 1 試料記号 B に表 2 の汚染なし試料 11 袋を混合して希釈し、今回作製したしいたけ（高濃度）用には、表 1 試料記号 A に表 2 の汚染なし試料 5 袋を混合して希釈した。

表 1：しいたけ原料の質量及び放射能濃度（粒状で測定したもの）

試料記号	質量(kg) ビニール袋込み	濃度(Bq/kg)	
		Cs-134	Cs-137
A	3.53	600	1100
B	1.83	700	1300
C	3.35	10	30
D	3.53	10	30

表 2：希釈用しいたけ試料の質量及び形状

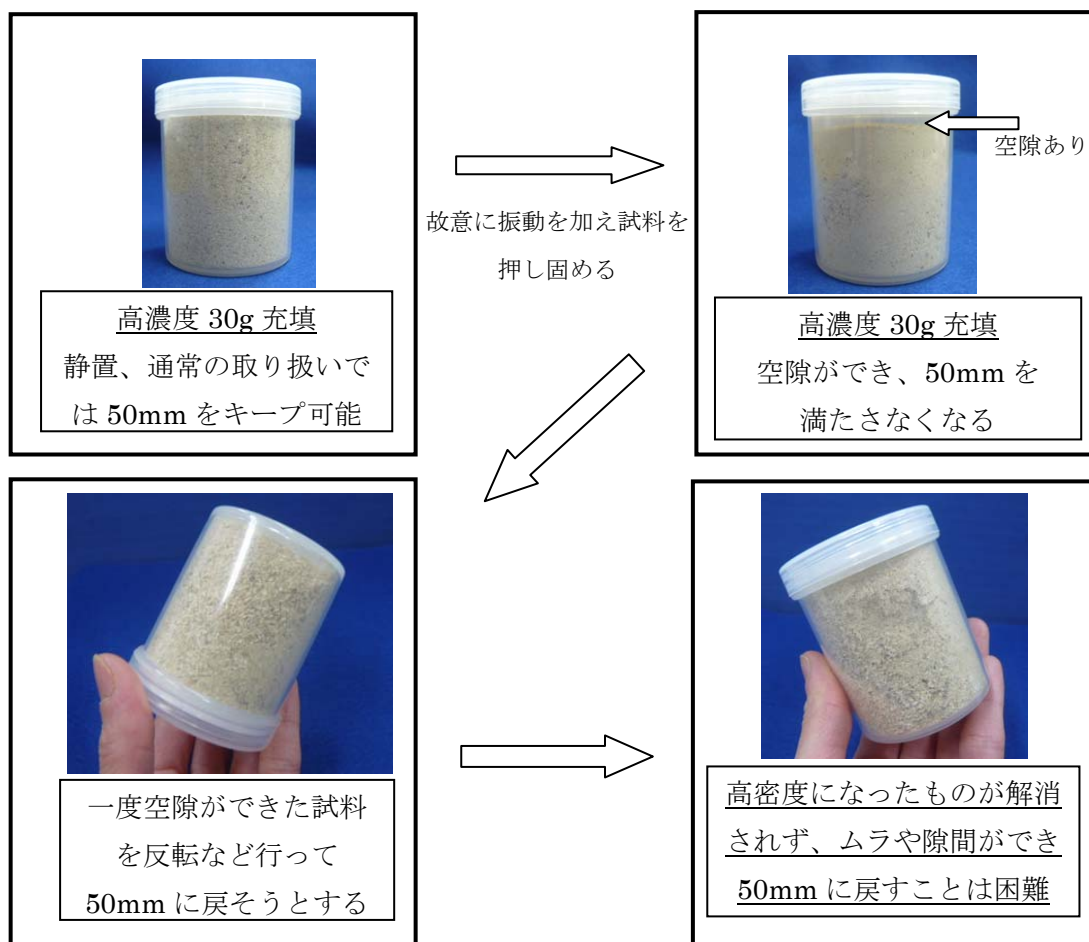
試料番号	形状	質量(kg) 紙袋込み
1	そのまま	3.42
2	スライス	3.59
3	スライス	3.54
4	スライス	3.4
5	そのまま	3.37
6	そのまま	3.4
7	そのまま	3.55
8	スライス	3.52
9	そのまま	3.5
10	そのまま	3.37
11	そのまま	3.43
12	スライス	3.54
13	スライス	3.42
14	スライス	3.81
15	そのまま	3.62
16	そのまま	3.48
	スライス	24.82
	そのまま	31.14
	合計	55.96



しいたけ（低濃度）試料を調製した後の放射性 Cs が、表 1 の試料 B の放射性 Cs 値（粒の状態  
で測定したもの）と整合していなかったため、今回使用した試料 A については、粉状  
に調製後、ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーで放射性 Cs を再  
測定した。その結果 3,910 Bq/kg であった。

## (2) 充填量について

粉碎・分級・混合を行った試料を用いて低濃度試料と同様に U8 容器への充填を試みた。  
低濃度試料の充填の際はトータル濃度・充填状況などを考慮し、充填量を 30g とした。今  
回の高濃度試料を同量充填したところ、充填時は 50mm の高さを満たすが、故意に振動を  
与えてみると、下図で示すように空隙が生じる場合があることが判明した（故意に振動等  
与えず丁寧に扱えば 50mm のキープは可能のようである。）。一度空隙ができてしまうと、  
反転などさせ 50mm 高さに戻そうとしても、回復が困難であった。



上記の検討結果より、高濃度試料の U8 容器への瓶詰めは 35 g とした。

## (3) その他

平成 26 年 9 月 29 日時点で試料記号 C, D（受領時資料に汚染なしと記載されている）の  
2 袋と希釈用汚染なし試料残り 1kg 程度を残試料として保管中である。

添付資料3: 参加試験所の測定条件と結果

供試品基準時での換算放射能濃度 2013-12-01 JST 00:00:00 (低濃度と同じ)

試験所 番号	核種	半減期 (出典を記入する)	エネルギー keV	放出率	ピーク効率cps/ $\gamma$	サム効果補正有 無	自己吸収補正有 無
1	Cs-134	2.0648y	604.72	0.9762	0.22%	無	無
	Cs-134	2.0648y	795.86	0.8553	0.17%	無	無
	Cs-134 (平均)						
	Cs-137	30.07y	661.66	0.851	0.20%	無	無
	K-40	1.28E+09	1460.83	0.107	0.10%	無	無
出典WWW Table of Radioactive Isotopes <a href="http://ie.lbl.gov/toi/">http://ie.lbl.gov/toi/</a>							
2	添付資料5に記載						
4	Cs-134	2.06	795.8	85.4	0.011931	有	有
	Cs-137	30.14	661.6	85.1	0.015206	有	有
	K-40	1277000000	1460.8	10.7	0.007642	有	有
出典: Atomic Data and Nuclear Data Tables(1983年)							
5	Cs-134	7.54.E+02	605	97.6	1.34.E-02	有	有
	Cs-137	1.10.E+04	662	85.0	1.32.E-02	無	有
	K-40	4.57.E+11	1461	10.6	6.49.E-03	無	有
出典: table de radionucleides 2007							
6	Cs-134	2.06y	475.35	1.47		0.88625	0.944528
	Cs-134	2.06Y	563.26	8.38		0.849912	0.948269
	Cs-134	2.06Y	569.29	15.43		0.847695	0.948502
	Cs-134	2.06Y	604.66	97.56		0.902862	0.949816
	Cs-134	2.06Y	795.76	85.44		0.906269	0.955683
	Cs-134	2.06Y	801.84	8.73		0.886250	0.955842
	Cs-134	2.06Y	1038.5	1		0.971151	0.961113
	Cs-134	2.06Y	1167.86	1.81		1.098370	0.963409
	Cs-134	2.06Y	1365.13	3.04		1.176219	0.966355
	Cs-134	2.06Y					
	Cs-137	30.2Y	661.64	85		1.000000	0.951764
K-40	1,280,000,000Y	1460.75	3.04		1.000000	0.967593	
出典: Tabel of Isotope 7th Edition							
8	Cs-134	2.062Y	569.32keV	15.43	0.015689	有	有
	Cs-134	2.062Y	604.70keV	97.60	0.0156411	有	有
	Cs-134	2.062Y	795.85keV	85.40	0.0119728	有	有
	Cs-134	2.062Y	801.93keV	8.73	0.0116847	有	有
	Cs-134	2.062Y	604.70keV	97.60	0.0156411	有	有
	Cs-137	30.00Y	661.66keV	85.21	0.0156427	-	有
	K-40	1.277×109Y	1460.75keV	10.67	0.00720751	-	有
【出展】半減期: 「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」 文部科学省・放射能測定法シリーズ7							

試験所 番号	核種	半減期 (出典を記入する)	エネルギー keV	放出率	ピーク効率cps/ $\gamma$	サム効果補正有 無	自己吸収補正有 無
10	Cs-134	753.1D	604.66	97.56		0.950153	0.949816
	Cs-134	753.1D	795.76	85.44		0.950635	0.955683
	Cs-137	$1.102 \times 10^4$ D	661.64	85.00		1	0.951764
	K-40	$4.664 \times 10^{11}$ D	1460.75	10.67		1	0.967593
11	Cs-134	$7.531 \times 10^2$ 日	604.66	97.56	0.022416	有	有
	Cs-137	$1.102 \times 10^4$ 日	661.64	85	0.023541	無	有
	K-40	$4.664 \times 10^{11}$ 日	1460.75	10.67	0.013455	無	有
	出典:放射能測定シリーズ7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー (文部科学省 科学技術)						
12	Cs-134	2.062y	604.66keV	97.56%		しいたけ認証標準物質 (JSAC 0771) と同じであると仮定	
	Cs-137	30.174y	661.638keV	85%			
	K-40	$1.277 \times 10^9$ y	1460.75keV	10.67%			
	出典:ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー						
14	Cs-134	2.0648(10) y	563.25	0.0835(4)	0.00097	ただし密度の違いによ る効率の違いは補正	有
	Cs-134	2.0648(11) y	569.33	0.1538(6)	0.00177		有
	Cs-134	2.0648(12) y	604.72	0.9762(3)	0.0114		有
	Cs-134	2.0648(13) y	795.86	0.8553(4)	0.0079		有
	Cs-134						
	Cs-137	30.07(3) y	661.66	0.851(2)	0.0102	無	有
	K-40	$1.277(8)E9$ y	1460.83	0.1067(13)	0.00064	無	有
	出典: Table of Isotopes 1998						
15	Cs-134	2.0648Y	605	0.9756	0.015636	有	有
	Cs-137	30.1671Y	662	0.85	0.015727	無	有
	K-40	$1.251 \times 10^9$ Y	1461	0.1067	0.0077	無	有
	出典: Table of isotope 7th. Ed.						
16	Cs-134	2.062年	604.66keV	0.9756	0.0182	有	有
	Cs-134	2.062年	795.76keV	0.8544	0.0146	有	有
	Cs-134	2.062年	604.66keV	0.9756	0.0182	有	有
	Cs-137	30.174年	661.638keV	0.85	0.0185	無	有
	K-40	$1.277 \times 10^9$ 年	1460.75keV	0.1067	0.00966	無	有
	出典:ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー平成4年改訂						
17	Cs-134	2.065	605	97.60%	1.048	無	有
	Cs-137	30.04	662	85.10%	0.998	無	有
	K-40		1461	10.70%	0.538	無	有
	出典:ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー平成4年改訂						
18	Cs-134	2.06年	604.66	97.56		有	有
	Cs-137	30.2年	661.64	85.00		有	有
	K-40	12.48億年	1460.75	10.67		有	有

カウント数 N, Nb, N',Nb'については末尾(カウント数)の図を参照して下さい。

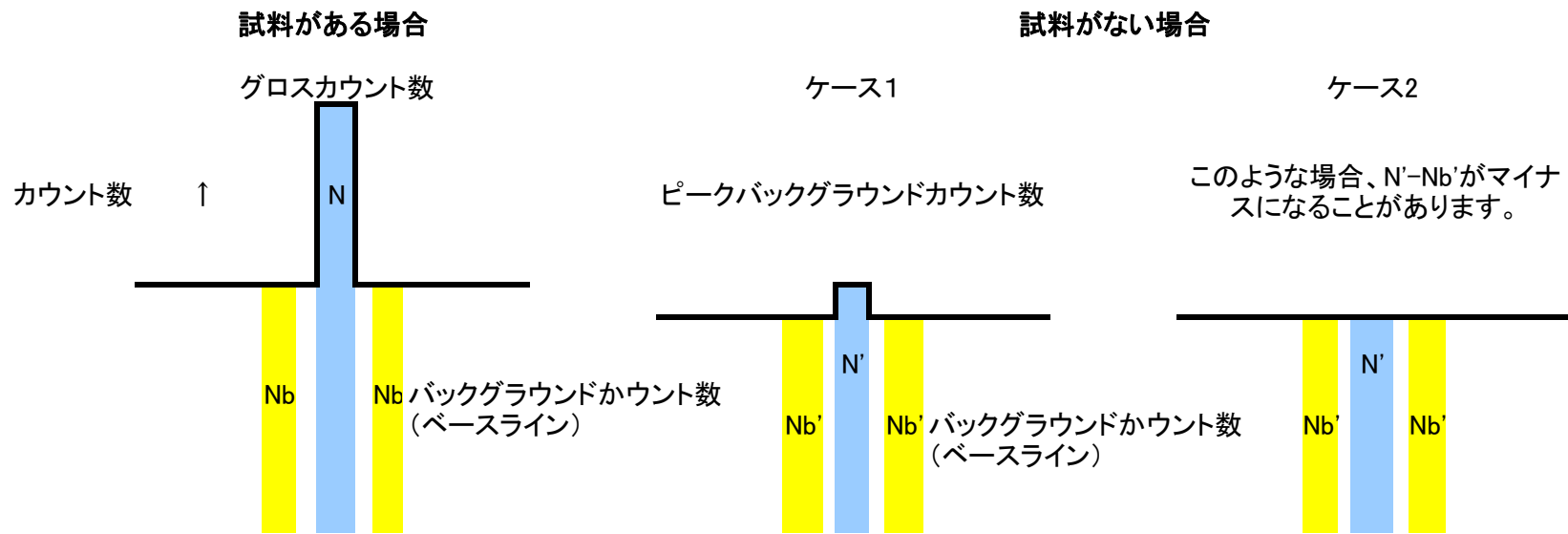
試験所 番号	ピーク面積計算方 法(関数法又はコ ベール法、その 他)	機器ソフト上で選 択した試料材質	測定時間 live time(秒)	グロスカウン 数 N	ベースラインカ ウント数 Nb	正味カウント数 N-Nb	ピーク計数率 (カウント数/秒)	試料がないときの グロスバックグラウ ンドカウント数 N' *
1	関数法		357000	5503.73		5503.73	0.015416611	532.38
	関数法		357000	3674.85		3674.85	0.010293697	361.4
	関数法		357000	11636.9		11636.9	0.032596359	512.24
	関数法		357000	2969.84		2969.84	0.00831888	2263.78
2								
4	コベール法	灰化物	70465	4802	220.8	4570.1	0.068147307	288
	コベール法	灰化物	70465	16489	319	16170	0.234002696	265
	コベール法	灰化物	70465	1314	55.7	1258.3	0.018647556	143
5	コベール法	水	250000	22200	1689	20511	0.09	2359
	コベール法	水	250000	53415	1231	52184	0.21	2352
	コベール法	水	250000	4793	183	4610	0.02	3433
6	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	1654.0	1421.0	2.3300E+02	2.0675E-02	1506
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	1395.0	656.7	7.3830E+02	1.7438E-02	1068
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	2223.0	664.9	1.5581E+03	2.7788E-02	1265
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	10632.0	838.8	0.0000E+00	1.3290E-01	1814
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	7163.0	262	6.9010E+03	8.9538E-02	1446
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	916.0	257.9	6.5810E+02	1.1450E-02	1423
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	236.0	166.3	0.0000E+00	2.9500E-03	262
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	313.0	188.1	0.0000E+00	3.9125E-03	555
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	317.0	72.4	2.4460E+02	3.9625E-03	452
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	26019.0	444.6	2.5574E+04	3.2524E-01	1174
関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80000	2155.0	91	2.0640E+03	2.6938E-02	490	
8	関数法	水、寒天	43200	1033	350.8	682.2	0.023912037	297
	関数法	水、寒天	43200	4579	378.1	4200.9	0.10599537	323
	関数法	水、寒天	43200	3002	139	2863	0.069490741	216
	関数法	水、寒天	43200	373	110.1	262.9	0.008634259	202
	関数法	水、寒天						
	関数法	水、寒天	43200	10634	223	10411	0.246157407	287
	関数法	水、寒天	43200	919	36	883	0.021273148	306

試験所 番号	ピーク面積計算方 法(関数法又はコ ペール法、その 他)	機器ソフト上で選 択した試料材質	測定時間 live time(秒)	グロスカウン ト数 N	ベースラインカ ウント数 Nb	正味カウント数 N-Nb	ピーク計数率 (カウント数/秒)	試料がないときの グロスバックグラ ウンドカウント数 N' *	
10		土壌, 海底土	86400	5485	258/192				
		土壌, 海底土	86400	3592	135/105				
		土壌, 海底土	86400	12449	182/127				
		土壌, 海底土	86400	1064	33/31				
11	コペール法	寒天	40000	6068	550.4	5517.6	0.13794	2252	
	コペール法	寒天	40000	15158	363	14795	0.369875	1097	
	コペール法	寒天	40000	1412	81.6	1330.4	0.03326	928	
・学術政策局原子力安全課防災環境対策室)									
12	関数法		501742			31635	0		
	関数法		501742			79124	0		
	関数法		501742			13006	0		
14	コペール法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	297525	4966	2682	2284	0.016691034	2103	
	コペール法		297525	6695	2682	4013	0.022502311	2154	
	コペール法		297525	28088	2630	25458	0.094405512	2671	
	コペール法		297525	18939	1344	17595	0.063655155	2022	
	コペール法		297525	64360	2256	62104	0.216317956	3273	
	コペール法		297525	8252	350	7902	0.027735484	5721	
15	コペール法	C <sub>6</sub> H <sub>10</sub> O <sub>5</sub> (セルロー ス重合体)	87331	9604	686.1	8917.9	0.109972404	2003	
	コペール法		87331	22828	492.5	22335.5	0.261396297	1712	
	コペール法		87331	1953	79.1	1873.9	0.022363193	1611	
16	コペール法	灰化物	43200	5341	517.8	4823.2	0.123634259	0	
	コペール法	灰化物	43200	3566	250.9	3315.1	0.082546296	0	
	コペール法	灰化物							
	コペール法	灰化物	43200	12577	395.8	12181.2	0.291134259	0	
	コペール法	灰化物	43200	2008	79	1929	0.046481481	3102	
17		手計算による	260000	16611	1220	15391	0.063888462	597	
		手計算による	260000	39693	1003.333333	38689.66667	0.152665385	523	
		手計算による	260000	3558	233.8333333	3324.166667	0.013684615	700	
18	関数適合法	水・寒天	86400	9810	939.3	8870.7	0.113541667	173	
	関数適合法	水・寒天	86400	24501	607	23894	0.283576389	168	
	関数適合法	水・寒天	86400	2931	93.8	2837.2	0.033923611	485	

\*事前に測定した値でよい

試験所 番号	試料がないときの ベースラインカウ ント数 Nb' *	試料がないときの 正味バックグラウ ンドカウント数 N'- Nb' *	バックグラウンド測 定時間* 秒	→		↓	拡張不確かさ (k=2) (Bq/kg)
				測定時の放射能 Bq	供試品作製時の 放射能 Bq		
1		532.38	861000	6.911	8.469	242	
		361.4	861000	6.696	8.206	234.4	
						238.2	
		512.24	861000	18.653	18.915	540.4	
		2263.78	861000	24.451	24.451	698.6	
2							
4	265.3	4.8	146464	6.4	7.8	220	23
	238.3	26.7	146464	18	18	510	51
	117.9	23	146464	22	22	620	71
5	2327	32	930000	6.3	7.9	224.4	4.8
	1965	387	930000	18.5	18.8	538.0	4.0
	628	2805	930000	22.5	22.5	643.2	5.9
6		1506	237600		1.100E+01	3.144E+02	6.642E+01
		1068	237600		6.867E+00	1.962E+02	1.055E+01
		1265	237600		7.903E+00	2.258E+02	7.255E+00
		0	237600		7.718E+00	2.205E+02	2.334E+00
		1446	237600		7.704E+00	2.201E+02	2.716E+00
		1423	237600		7.431E+00	2.123E+02	9.903E+00
		0	237600		7.630E+00	2.180E+02	2.857E+01
		0	237600		6.864E-02	1.961E+00	2.857E+00
		452	237600		8.761E+00	2.503E+02	1.987E+01
				荷重平均放射能	7.700E+00	2.200E+02	1.663E+00
		1174	237600		1.852E+01	5.292E+02	3.349E+00
	490	237600		2.195E+01	6.270E+02	1.437E+01	
8	273.6	23.4	86400	6.758	8.229	235.1	25.01
	318.8	4.2	86400	6.402	7.796	222.7	13.15
	193.9	22.1	86400	6.49	7.903	225.8	14.08
	191.6	10.4	86400	5.765	7.02	200.6	33.51
						222.7	13.15
	237	50	86400	18.07	18.32	523.3	27.77
	43.3	262.7	86400	22.4	22.4	640.1	63.9
		0					

試験所 番号	試料がないときの ベースラインカウ ント数 Nb' *	試料がないときの 正味バックグラウ ンドカウント数 N'- Nb' *	バックグラウンド測 定時間* 秒	測定時の放射能 Bq	供試品作製時の 放射能 Bq	供試品作製時 の放射能濃度 (Bq/kg)	拡張不確かさ (k=2) (Bq/kg)
10		0	250000			229	
		0	250000			225	
		0	250000			542	
		106.8	250000			646	
11	2168.1	83.9	250000	6.3075	7.7943	222.7	14.0
	1112.8	-15.8	250000	18.4846	18.7539	535.8	31.6
	498.8	429.2	250000	21.9714	21.9714	627.8	54.0
12		0		7.73E+00	6.20E+00	221.0	
		0		1.87E+01	1.84E+01	535.1	
		831	7.03E+04	2.08E+01	2.08E+01	593.5	
14	2000	103	465642	7.11			
	1948	206	465642	6.83			
	1752	919	465642	6.76			
	1365	657	465642	6.8			
			Weighted average	6.78	8.22	234	11
	1791	1482	465642	18.4	18.6	531	23
	560	5161	465642	22.4	22.4	638	33
15	1838.3	164.7	519257	6.673	8.155	233	5.38
	1539.5	172.5	519257	19.07	19.34	552	7.60
	470.6	1140.4	519257	23.43	23.43	670	36.4
16	0	0	129600	6.64	8.14	233	13
	0	0	129600	6.44	7.9	226	14
						233	13
	0	0	129600	18.9	19.1	546	28
	201.8	2900.2	129600	22.5	22.5	644	70
17	510	87	260000	5.78896142	7.447494554	213	
	523.3333333	-0.333333333	260000	17.52988938	17.83611118	510	
	115.5	584.5	260000	18.3215466	18.3215466	523	
		0					
18	167.9	5.1	36000	6.09	7.833	223.8	11.4
	153	15	36000	18.49	18.81	537.5	25.7
	31.6	453.4	36000	22.211	22.21	634.6	62.8254





添付資料4 : 共同実験参加試験所のその他の測定条件

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の相対効率	検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源の種類、質量、密度、容器(充填高さ)、核種毎の検出効率(cps/Bq)、できれば自己吸収計算方法やソフト名など	試料測定方法:報告シート(1)以外の、質量、密度、容器(充填高さ)など	その他のコメント
1	γ線スペクトロメトリ	セイコーEG&G Ge検出器GEM20P4-70	相対効率20%	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源Co-60,Mn-54,Cs-137等 線源コードMX033U8PP, 線源番号2753	質量35.0g U8容器(内径48mm, 高さ50mm) サム効果や自己吸収の補正は行っていないが、サム効果を減らすため試料と標準線源は検出器から8cmの距離をとった。効率曲線は同じ高さの体積混合線源Co-60,Mn-54,Cs-137,Y-88の合計6ピークの効率を両対数グラフで線形近似して求めた。	Cs-134の定量は2つのピークの平均値 バックグラウンドカウン 数Nb,Nb'はピークフィッ ティングを行っているの で、求めていない。解析 方法の詳細は文献(鈴木 章悟, 伊下信也: Radioisotopes,57,429(20 08))に記載
2	γ線スペクトロメトリ	報告なし			添付資料5に記載	
4	γ線スペクトロメトリー	CANBERRA社製 GC2519- 7915-30	31	検出効率については別添参照 自己吸収補正方法:文部科学省測 定法シリーズに準拠 使用ソフトウェア:SEIKO EG&G社製 ガンマスタジオ	重量: 35.0 g 密度: 0.385 g/cm <sup>3</sup> 容器: U-8(充填高: 50mm)	
5	ゲルマニウム半導体検出器に よる ガンマ線スペクトロメトリー	ORTEC GEM20	23%	標準線源の種類 9核種混合 放射能標準ガンマ体積 線源(U8タイプ)  自己吸収計算に使用したソフト名 Gamma studio	質量: 35.0 g 密度: 0.380 g/cm <sup>3</sup> 容器: U8タイプ(プラ壺) 充填高さ: 49.5 mm	特になし
6	同軸型Ge半導体検出器を用い た測定	Canberra GC4018 (S/N 10399)	43.80%	放射能標準ガンマ線体積線源(アル ミナ)、日本アイソトープ協会	重量35.0g、高さ5cm、密度0.387	
8	ゲルマニウム半導体検出器に よるガンマ線スペクトロメトリー	・メーカー: CANBERRA社 ・型式: GC2018	24.50%	別紙に記載	・質量: 35.0g ・密度: 0.395g/cm <sup>3</sup> ・充填高さ: 5.0cm	<Cs-134の定量方法> 放出効率が最も大き いエネルギー (604.70keV)での値を、 Cs-134の値として採用 した。 (他のエネルギーも含む 荷重平均値は、データ の検証・確認用としての み使用)

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の相対効率	検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源の種類、質量、密度、容器(充填高さ)、核種毎の検出効率(cps/Bq)、できれば自己吸収計算方法やソフト名など	試料測定方法:報告シート(1)以外の、質量、密度、容器(充填高さ)など	その他のコメント
10	ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー	Ge検出器GEM 20190 26D1742B	20.29%	標準線源基準日: 2013 使用した核種: Cd-109(88.032keV), Co-57(122.058keV) Co-57(136.471keV), Ce-139(165.85keV) Cr-51(320.076keV), Sr-51(514.000keV) Cs-137(661.638keV), Mn-54(834.827keV) Y-88(898.030keV), Co-60(1173.21keV) Co-60(1332.47keV), Y-88(1836.00keV)	試料高さ: 50 mm 試料: 35 g 材質設定: 灰化物 比重: 0.387 g/cm3	自己吸収補正、サム効果補正あり。
11	ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー法	オルテック GMX-60-83	65.50%	標準線源:放射能標準ガンマ体積線源(エポキシ樹脂)EG-ML1725-1-1~5(Eckert & Ziegler) 校正:標準ガンマ体積線源高さ5段階(5, 10, 20, 30, 50mm) 標準線源情報:別表1 校正に用いた核種:別表2 核種毎の検出効率:別表2 自己吸収計算:セイコー イージーアンドジー(株)製「γスタジオ」による	試料正味重量は本共同実験の測定手順書に記載された重量をそのまま用いた。 試料の充填高さ、重量、密度の情報を入力し、セイコー イージーアンドジー(株)製解析プログラムの登録情報(サム効果補正係数、自己吸収率補正係数)により定量した。 充填高さ: 50mm 重量: 0.035kg 密度: 0.386g/cm3	解析システム: セイコー E G & G (株) Cs134の定量値について 795.76keVのピークは同核種の801.84keVのピーク及び、Ac-228のピークが重なるため、604.66keV、795.76keV双方の値に大差が無いことを確認した上で604.66keVの値を採用することとする。
12	標準物質(しいたけ 低濃度)との比較法	CANBERRA GC4020-7500SL	40%	標準線源:しいたけ認証標準物質(粉末状, 低濃度)JSAC 0771 使用ソフト:スペクトロエクスプローラー	35 g h = 50 mm ρ = 0.387	

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の相対効率	検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源の種類、質量、密度、容器(充填高さ)、核種毎の検出効率(cps/Bq)、できれば自己吸収計算方法やソフト名など	試料測定方法:報告シート(1)以外の、質量、密度、容器(充填高さ)など	その他のコメント
14	γ線測定	ORTEC GMX25P4	28%	<ul style="list-style-type: none"> <li>・Cs134とCs137の標準線源は、基になる線源溶液から100-200 μL正確に秤量したものを100mLの水に滴下してそれぞれ作製。基になる線源溶液の放射能濃度は、その溶液で点線源を作製し、市販の点線源と比較測定し決定。</li> <li>・K40線源は、容量分析用水酸化カリウム溶液を用いて作製。</li> <li>・自己吸収の補正は、分析試料、Cs溶液、KOH溶液それぞれのγ線吸収係数を実測した上で、積分法により自己吸収割合を計算し、各試料間での自己吸収の違い(7.5-9.9%程度)を補正。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・100mLのPE製広口ビン(内径47.5mm)に試料を充填し(35.10g)、ビンの側面をGe検出器(横型)の前面アクリルキャップに密着させて測定。</li> <li>・標準線源も同じ100mLのPE製広口ビンで作成し、同じジオメトリで測定。</li> </ul>	Cs134を含む標準線源を用いているため、Cs134のサム補正は本来なら必要ないが、自己吸収の違いに起因する効率の違いによって僅かに分析試料と標準線源の間でサム補正量が異なるので、その違い(1.0-1.6%程度)を計算し補正。
15	送付されたU8容器重点済みの大豆試料をポリエチレン袋に入れた後、Ge半導体検出器のエンドキャップ上に置き、測定。	キャンベラ社 GX2518	30.29%	SEIKO EG&G γスタジオにより、自己吸収計算、サム効果補正等を行った。標準線源は(社)日本アイソトープ協会よりU8容器に高さ5cmまで充填された9核種混合体積標準線源(MX033PP-0011JCSS証明済み、準日2013年11月11日12時)を購入し、使用した。	質量 0.035 kg 密度 0.387 kg/L 容器(充填高さ) 50mm	不確かさ:各核種の放射能測定に伴う誤差(σ)に計数2を乗じて算出した。
16	γ線スペクトロメータ(ゲルマニウム半導体検出器)法	オルテック社製 GEM35-70	39.40%	標準線源 質量:97.0g 密度:1.102 g/cm <sup>3</sup> 容器(充填高さ):U-8(50mm) 検出効率(cps/Bq): <sup>109</sup> Cd(88.032keV):0.00146 <sup>57</sup> Co(122.058keV):0.0400 <sup>57</sup> Co(136.471keV):0.00509 <sup>139</sup> Ce(165.85keV):0.0348 <sup>85</sup> Sr(514.000keV):0.0196 <sup>137</sup> Cs(661.638keV):0.0137 <sup>54</sup> Mn(834.827keV):0.0138 <sup>88</sup> Y(898.030keV):0.0114 <sup>60</sup> Co(1173.21keV):0.00989 <sup>60</sup> Co(1332.47keV):0.00895 <sup>88</sup> Y(1836.00keV):0.00687 計算ソフト名:Gamma Studio	質量:35g 密度:0.398g/cm <sup>3</sup> 容器:U-8(充填高さ50mm)	Cs134については放出比が一番高いエネルギーの値を採用した。  ブランクのカウント数はCs134及びCs137は2σ以下のためカウント数をゼロとした。

試験所 番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の相対 効率	検出効率(cps/Bq)を求めるために 使用した標準線源の種類、質量、密 度、容器(充填高さ)、核種毎の検 出効率(cps/Bq)、できれば自己吸 収計算方法やソフト名など	試料測定方法:報告シート(1)以 外の、質量、密度、容器(充填高 さ)など	その他のコメント
17	γ線スペクトロメトリー	CANBERA GC-2018-7915-30		線源 KCLの水溶液 自己吸収計算:密度が"0"の場合 と"1"の場合の計数効率を求め、密 度0.35のしいたけ試料の計数効率 を内挿法により求めた。		
18	ゲルマニウム半導体検出器を 用いたガンマ線スペクトロペ トリーによる各種分析法	GC2518(キャンベラ社製)	・Ge検出器の相 対効率:29%	放射能標準ガンマ体積線源(アルミ ナ)((社)日本アイソトープ協会)U8 サイズ	・質量:35.0g ・密度:0.339g/cm <sup>3</sup> ・容器(重点高さ):5.000cm	

Lab 2

しいたけ (高濃度)

Nuclide	Energy / keV	放出割合 / %	Eff.	Sample weight / kg	測定時間 / sec	cps	1σ	Activity / Bq	1σ	Activity (時間補正後) / Bq	1σ	Activity conc. / Bq kg <sup>-1</sup>	1σ	<sup>134</sup> Cs+ <sup>137</sup> Cs / Bq kg <sup>-1</sup>
Cs-134	604.7	0.976	8.91E-03	0.03500	149,063	5.29E-02	5.96E-04	6.08	0.07	7.45	0.07	<u>212.8</u>	<u>2</u>	<b>745</b>
Cs-137	661.7	0.851	8.13E-03	0.03500	149,063	1.27E-01	9.25E-04	18.4	0.1	18.6	0.1	<u>531.8</u>	<u>4</u>	
K-40	1460.8	0.107	3.61E-03	0.03500	149,063	8.78E-03	2.52E-04	22.7	0.7	22.7	0.7	<u>649.1</u>	<u>19</u>	

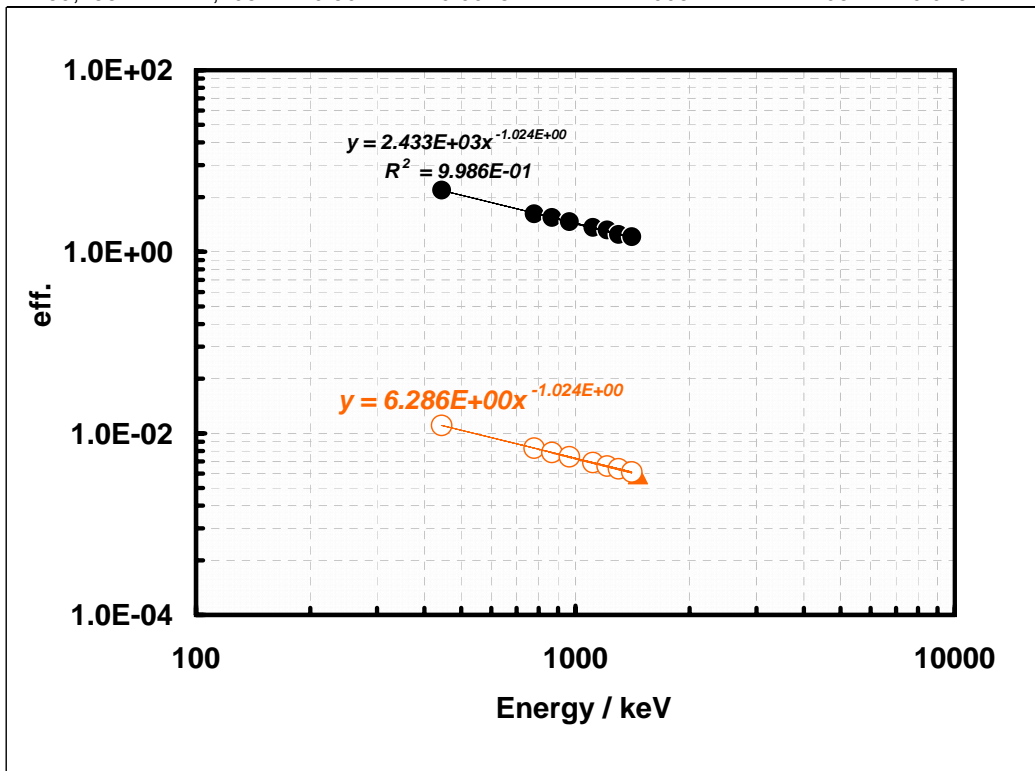
標準

<sup>40</sup>K

サンプル	Energy / keV	高さ (cm)	γ [%]	KCl 正味の重量 (g)	Activity (Bq)	gps	cps (net)	eff. (1461 keV)	a	b
KCL (U-8)	1460.8	5.0	10.67	104	1689	180	0.65	3.61E-03	-1.024	6.286

<sup>152</sup>Eu

Live time	keV	cps	err (1σ)	γ [%]	dps	err (1σ)	err (1σ) / %	a	b	Eff.
39,288	444	0.1507	0.0020	3.148	4.787	0.062	1.30	0.068486887	7.448	1.13E+01
39,288	779	0.3393	0.0029	12.94	2.621	0.023	0.87	0.068486887	7.448	1.18E+01
39,288	867	0.1015	0.0016	4.245	2.390	0.038	1.58	0.068486887	7.448	1.18E+01
39,288	964	0.3132	0.0028	14.61	2.144	0.019	0.90	0.068486887	7.448	1.19E+01
39,288	1,112	0.2536	0.0025	13.644	1.858	0.019	1.00	0.068486887	7.448	1.20E+01
39,288	1,213	0.0247	0.0013	1.422	1.739	0.089	5.09	0.068486887	7.448	1.21E+01
39,288	1,299	0.0252	0.0008	1.623	1.553	0.049	3.18	0.068486887	7.448	1.22E+01
39,288	1,408	0.3077	0.0028	21.005	1.465	0.013	0.91	0.068486887	7.448	1.22E+01



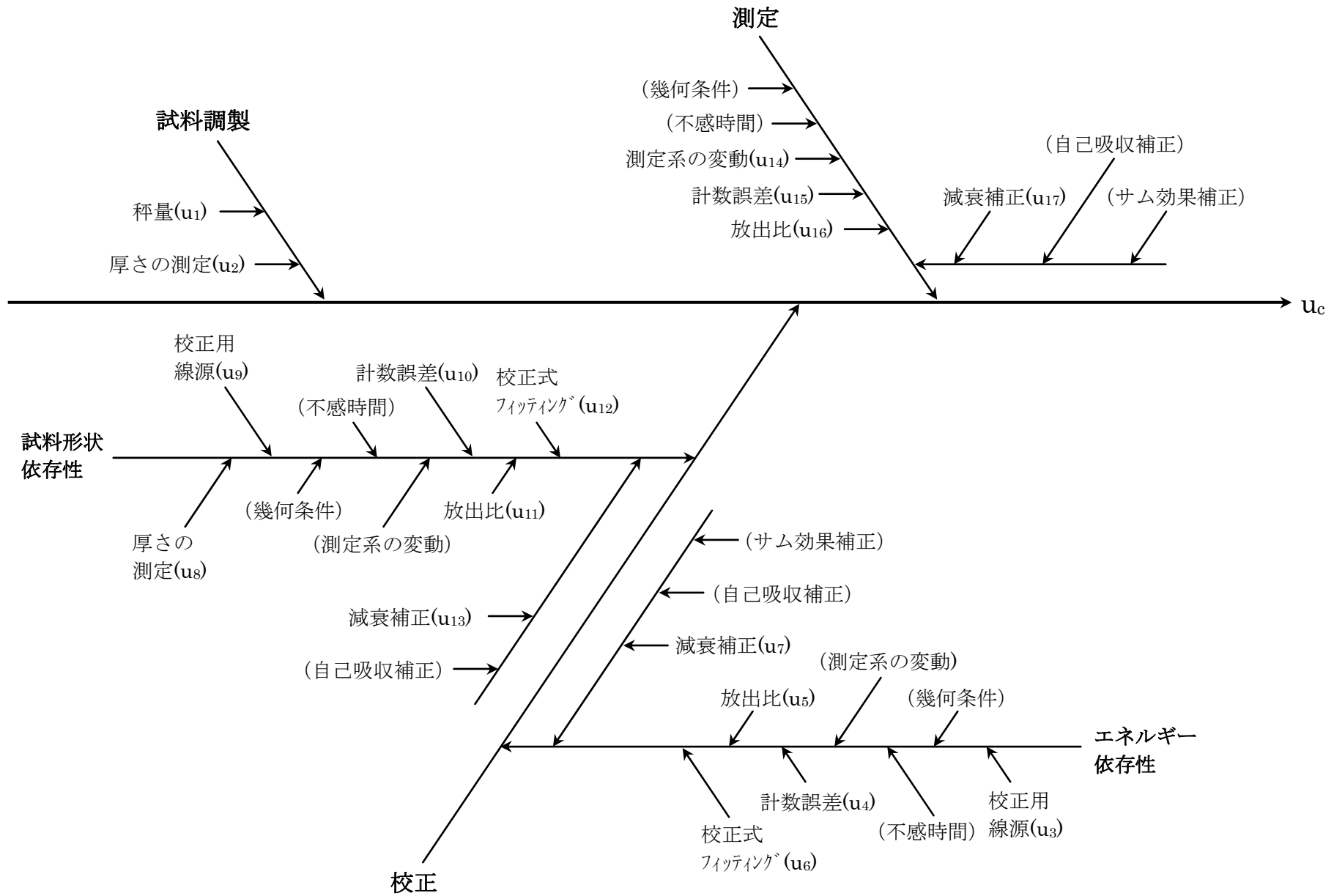
# Lab 4

別添

Ge検出器とγ線スペクトロメリー検出効率に関する情報を記載する。

・感度係数(cps/Bq)を求めるために 使用した標準線源名	エネルギー依存性 : 日本アイソトープ協会製 MX402 53 測定試料形状依存性 : 日本アイソトープ協会製 CS031U8PP		
・感度係数(cps/Bq)を求めるために使用した全ての核種の感度係数 (cps/Bq)		検出効率 (cps/γ)	サム効果や自己吸収補正の有無など、校正・測定方法を付記する。
エネルギー依存性(9核種混合点線源)			
Cd-109	0.00161	0.0446	測定試料形状依存性は <sup>137</sup> Cs容積線源を、エネルギー依存性は混合核種点線源を、それぞれ測定して求めた。なお、 <sup>57</sup> Co、 <sup>60</sup> Co及び <sup>88</sup> Yのピーク効率を求める際には、サム効果の影響について補正した。測定試料によるγ線の自己吸収は、試料ごとに計算により補正した。また、 <sup>134</sup> Csはサム効果の影響を補正した。
Co- 57	0.0357	0.0418	
Ce-139	0.0281	0.0352	
Cr- 51	0.00191	0.0194	
Cs-137	0.00827	0.00972	
Mn- 54	0.00790	0.00790	
Y-88(898keV)	0.00702	0.00747	
Y-88(1836keV)	0.00391	0.00393	
Co-60(1173keV)	0.00583	0.00584	
Co-60(1333keV)	0.00525	0.00525	

測定試料形状依存性( <sup>137</sup> Cs容積線源)			
重量: 9.5g、密度: 1.044g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(充填高: 5.0mm)	0.0287	0.0337	
重量: 19.0g、密度: 0.994g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(10.5mm)	0.0254	0.0298	
重量: 38.0g、密度: 0.994g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(21.0mm)	0.0206	0.0242	
重量: 57.0g、密度: 1.010g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(31.0mm)	0.0177	0.0207	
重量: 76.0g、密度: 1.018g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(41.0mm)	0.0154	0.0181	
重量: 88.0g、密度: 1.029g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(47.0mm)	0.0144	0.0169	



Lab 5 : 不確かさの算出根拠

不確かさの要因	Type	相対標準不確かさ(%)		
		Cs-134(605keV)	Cs-137(662keV)	K-40(1461keV)
計数統計	A	0.76	0.45	1.88
ピーク効率校正	B	1.62	1.33	1.49
減衰補正	B	<0.1	<0.1	<0.1
校正位置の再現性	B	<0.1	<0.1	<0.1
均質性	B	1.36	1.36	1.39
ガンマ線放出割合	B	0.08	0.24	1.04
自己吸収補正	B	0.20	0.18	0.13
カスケードサム効果補正	B	0.77	0.00	0.00
相対合成標準不確かさ (k=1)		<b>2.4</b>	<b>2.0</b>	<b>3.0</b>
相対拡張不確かさ (k=2)		<b>4.8</b>	<b>4.0</b>	<b>5.9</b>



## Lab 8

### 1.標準線源の高さ、重量、密度

高さ(mm)	重量(g)	密度(g/cm <sup>3</sup> )
5.0	9.4	1.061
10	18.8	1.061
20	37.6	1.061
30	56.4	1.061
50	94.0	1.061

### 2.核種ごとの検出効率

核種名	エネルギー(eV)	放出比(%)	感度係数(cps/Bq)					検出効率(%)				
			5.0mm	10mm	20mm	30mm	50mm	5.0mm	10mm	20mm	30mm	50mm
Cd-109	88.03	3.79	0.601	0.560	0.387	0.308	0.215	15.868	14.766	10.220	8.133	5.665
Co- 57	122.06	85.6	13.653	12.929	9.005	7.245	5.127	15.950	15.104	10.520	8.464	5.989
Co- 57	136.47	11.10	1.685	1.594	1.116	0.901	0.642	15.178	14.358	10.058	8.119	5.780
Ge-139	165.85	79.90	10.428	9.797	6.961	5.650	4.068	13.051	12.262	8.712	7.071	5.091
Cr- 51	320.08	10.20	0.707	0.668	0.481	0.392	0.282	6.927	6.551	4.713	3.844	2.764
Sr- 85	514	99.27	4.386	4.154	2.992	2.443	1.758	4.418	4.185	3.014	2.461	1.771
Cs-137	661.64	85.00	2.962	2.804	2.016	1.646	1.186	3.485	3.299	2.372	1.936	1.395
Mn- 54	834.83	100	2.805	2.653	1.901	1.551	1.119	2.805	2.653	1.901	1.551	1.119
Y - 88	898.02	91.29	2.121	2.020	1.498	1.241	0.911	2.323	2.213	1.641	1.359	0.998
Co- 60	1173.21	100	1.782	1.695	1.254	1.040	0.767	1.782	1.695	1.254	1.040	0.767
Co- 60	1332.47	100	1.574	1.496	1.105	0.916	0.677	1.574	1.496	1.105	0.916	0.677
Y - 88	1836.13	99.34	1.161	1.099	0.803	0.665	0.493	1.169	1.106	0.808	0.669	0.496

### 3.自己吸収計算方法

自己吸収のあるピーク効率を、 $\varepsilon_s$ 、自己吸収のないピーク効率を  $\varepsilon$  とすると、 $\varepsilon_s$ と  $\varepsilon$  の関係式は

$$\varepsilon_s = \varepsilon \times f_{\text{abs}}$$

となる。 $f_{\text{abs}}$ は自己吸収係数であり、以下の式により求める。

$$f_{\text{abs}} = \frac{\int \text{Eff}(x) \cdot \exp(-\mu x) dx}{\int \text{Eff}(x) dx}$$

ここに、 $\text{Eff}(x)$  : 試料の底面から距離 $x$ における微厚な円板 $dx$ の効率で、 $\text{Eff} = A / (D+x)^2$

A : 定数(先の計算式では分子子により相殺される)

D : 検出器の実効中心から試料の底面までの距離(cm)

$\mu$  : 着目エネルギーにおける試料の線減弱係数(/cm)

線減弱係数  $\mu$  については、以下の式によって求める。

$$\mu = \rho \times \{0.6023 / M (2 \times \mu_{\text{Al}} + 3 \times \mu_{\text{O}})\}$$

$\mu$  : 線減衰係数

$\rho$  : 試料密度

M: 試料の原子量(アルミナ=101.96)

$\mu_{\text{Al}}$ : アルミニウム原子の全相互作用断面積

$\mu_{\text{O}}$ : 酸素原子の全相互作用断面積

### 4.使用ソフト名

Spectrum Explorer及びGamma Explorer(キャンベラジャパン株式会社)

## Lab 8

不確かさの算出については、以下の1～5の不確かさの評価における要因ごとの基本的な考え方を参考に算出した。

### 1. 天秤目盛不確かさの評価

検査品の重量と天秤最小目盛から、下記評価方法にしたがい相対標準不確かさを算出した。

既知の値を利用したため評価項目から除外した

### 2. 定規目盛不確かさの評価

U8容器を用いて高さ補正を行う場合、検査品の高さとその測定に用いた定規の最小目盛から、下記評価方法にしたがい相対標準不確かさを算出した。

#### <定規目盛不確かさの評価方法>

種類	検査品高さ (cm)	最小目盛 (cm)	評価モデル	不確かさ (—)	相対標準 不確かさ
高さ測定	H	0.1	検出効率の 最小差異に 基づいた 矩形分布	$C/2\sqrt{3}$	$C/(2\sqrt{3} \cdot \text{Eff}_{Hcm})$
	検出効率の最小差異				
	$\therefore (A+B)/2 = C/2$ $A = \text{Eff}_{H-0.1cm} - \text{Eff}_{Hcm}$ $B = \text{Eff}_{Hcm} - \text{Eff}_{H+1cm}$ $C = \text{Eff}_{H-0.1cm} - \text{Eff}_{H+1cm}$ (Eff <sub>Xcm</sub> : Xcmの検出効率)				

例) H=4.8cmの場合 : Eff<sub>4.7cm</sub>=0.01442, Eff<sub>4.8cm</sub>=0.01420, Eff<sub>4.9cm</sub>=0.01400

⇒※相対標準不確かさ =  $(0.01442 - 0.01400) / (2\sqrt{3} \times 0.01420) = 0.008538$

### 3. 標準線源不確かさの評価

標準体積線源のJCSS校正証明書における相対拡張不確かさから、下記評価方法にしたがい相対標準不確かさを算出した。

#### <標準線源不確かさの評価方法>

種類	相対拡張不確かさ (%)	評価モデル	不確かさ (%)	相対標準 不確かさ
標準線源	V (包含係数 : k=2)	校正証明書 (標準偏差)	V/2 (包含係数 : k=1)	(V/2)/100

例) 相対拡張不確かさV=4.7%の場合 : 相対標準不確かさ =  $4.7/200 = 0.0235$

注1) <sup>134</sup>Csの不確かさ評価においては、便宜上<sup>137</sup>Csの相対拡張不確かさを採用した

注2) <sup>40</sup>Kの不確かさ評価においては、便宜上<sup>60</sup>Coの相対拡張不確かさを採用した

#### 4. 効率校正不確かさの評価

効率校正に用いた標準体積線源の測定データより、下記評価方法により相対標準不確かさを算出した。

種類	効率校正に用いたデータの計数率 (Bq)	評価モデル	計数誤差 (Bq)	相対標準不確かさ
効率校正	R	実測データの標準偏差	$\sigma$	$\sigma/R$

例)  $^{137}\text{Cs}$ の計数率=400 (Bq)、計数誤差=2.0 (Bq) の場合：相対標準不確かさ =  $2.0/400 = 0.005$

注1)  $^{134}\text{Cs}$ の不確かさ評価においては、便宜上 $^{137}\text{Cs}$ のデータを採用した。

注2)  $^{40}\text{K}$ の不確かさ評価においては、便宜上 $^{60}\text{Co}$ のデータを採用した。

#### 5. 計数誤差の評価

測定結果における放射能濃度と不確かさから、下記評価方法により相対標準不確かさを算出した。

##### <計数誤差の評価方法>

種類	放射能濃度 (Bq/kg)	評価モデル	不確かさ (Bq/kg)	相対標準不確かさ
標準線源	$R \pm \sigma$	計数誤差 (標準偏差)	$\sigma$	$\sigma/R$

例) 放射能濃度が $100 \pm 5.0$  Bq/kgの場合：相対標準不確かさ =  $5.0/100 = 0.050$

#### 6. 不確かさの合成

上記の1~5で算出した要因ごとの不確かさを下記の方法により合成し、合成相対標準不確かさおよび拡張不確かさを求めた。

##### <不確かさの合成方法>

要因ごとの相対標準不確かさ					合成相対標準不確かさ U (k=1)	拡張不確かさ (k=2)
$U_1$	$U_2$	$U_3$	$U_4$	$U_5$	$\sqrt{U_1^2 + U_2^2 + U_3^2 + U_4^2 + U_5^2}$	$2 \times U$

# Lab 11

## 別表1 校正に用いた標準線源

### 高さ5mm

核種	放射能 <sup>※</sup> (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
Pb-210	$1.71 \times 10^2$	11.2	6.99	9.44	0.735
Am-241	$1.70 \times 10^1$	3.1			
Cd-109	$1.44 \times 10^2$	2.7			
Co-57	$9.41 \times 10^0$	2.3			
Ce-139	$1.19 \times 10^1$	2.3			
Cr-51	$2.99 \times 10^2$	2.4			
Sr-85	$3.01 \times 10^1$	2.3			
Cs-137	$1.16 \times 10^1$	2.3			
Mn-54	$1.56 \times 10^1$	2.3			
Y-88	$3.43 \times 10^1$	2.3			
Co-60	$1.98 \times 10^1$	2.3			

### 高さ10mm

核種	放射能 <sup>※</sup> (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
Pb-210	$3.41 \times 10^2$	11.2	12.17	18.81	0.847
Am-241	$3.38 \times 10^1$	3.1			
Cd-109	$2.88 \times 10^2$	2.7			
Co-57	$1.88 \times 10^1$	2.3			
Ce-139	$2.37 \times 10^1$	2.3			
Cr-51	$5.96 \times 10^2$	2.4			
Sr-85	$6.00 \times 10^1$	2.3			
Cs-137	$2.30 \times 10^1$	2.3			
Mn-54	$3.11 \times 10^1$	2.3			
Y-88	$6.84 \times 10^1$	2.3			
Co-60	$3.94 \times 10^1$	2.3			

### 高さ20mm

核種	放射能 <sup>※</sup> (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
Pb-210	$6.80 \times 10^2$	11.2	22.00	37.52	0.938
Am-241	$6.75 \times 10^1$	3.1			
Cd-109	$5.74 \times 10^2$	2.7			
Co-57	$3.74 \times 10^1$	2.3			
Ce-139	$4.72 \times 10^1$	2.3			
Cr-51	$1.19 \times 10^3$	2.4			
Sr-85	$1.20 \times 10^2$	2.3			
Cs-137	$4.60 \times 10^1$	2.3			
Mn-54	$6.19 \times 10^1$	2.3			
Y-88	$1.37 \times 10^2$	2.3			
Co-60	$7.87 \times 10^1$	2.3			

### 高さ30mm

核種	放射能 <sup>※</sup> (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
Pb-210	$1.02 \times 10^3$	11.2	32.61	56.35	0.952
Am-241	$1.01 \times 10^2$	3.1			
Cd-109	$8.62 \times 10^2$	2.7			
Co-57	$5.62 \times 10^1$	2.3			
Ce-139	$7.10 \times 10^1$	2.3			
Cr-51	$1.79 \times 10^3$	2.4			
Sr-85	$1.80 \times 10^2$	2.3			
Cs-137	$6.90 \times 10^1$	2.3			
Mn-54	$9.30 \times 10^1$	2.3			
Y-88	$2.05 \times 10^2$	2.3			
Co-60	$1.18 \times 10^2$	2.3			

### 高さ50mm

核種	放射能 <sup>※</sup> (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
Pb-210	$1.70 \times 10^3$	11.2	52.10	93.87	0.994
Am-241	$1.69 \times 10^2$	3.1			
Cd-109	$1.44 \times 10^3$	2.7			
Co-57	$9.36 \times 10^1$	2.3			
Ce-139	$118 \times 10^2$	2.3			
Cr-51	$2.97 \times 10^3$	2.4			
Sr-85	$2.99 \times 10^2$	2.3			
Cs-137	$1.15 \times 10^2$	2.3			
Mn-54	$1.55 \times 10^2$	2.3			
Y-88	$3.42 \times 10^2$	2.3			
Co-60	$1.97 \times 10^2$	2.3			

※ 放射能基準日：2014年1月1日 12時00分

## Lab 11

別表2 効率校正に用いた核種および測定効率および近似効率

核種	ピークエネルギー (keV)	高さ5mm		高さ10mm		高さ20mm		高さ30mm		高さ50mm	
		測定効率	近似効率	測定効率	近似効率	測定効率	近似効率	測定効率	近似効率	測定効率	近似効率
Pb-210	46.50	0.1933793	0.1882201	0.1718815	0.167548	0.1452067	0.1412922	0.1242082	0.1212545	0.09516462	0.09255011
Am-241	59.54	0.1801772	0.1863777	0.1612282	0.1654806	0.1358258	0.1403282	0.1169985	0.1201963	0.08913521	0.09206402
Cd-109	88.03	0.1805781	0.1834981	0.1568058	0.1622603	0.1358897	0.1388157	0.1156817	0.1185401	0.08907612	0.09129982
Co-57	122.06	0.1746494	0.1654931	0.1558139	0.1473309	0.1310855	0.1258799	0.1108056	0.1075010	0.08485377	0.08309299
Ce-139	165.85	0.1230066	0.1319038	0.1110883	0.1176040	0.09614336	0.1005016	0.08304666	0.08599579	0.06481033	0.06645141
Cr-51	320.11	0.08366717	0.08108520	0.07490621	0.07252754	0.06345125	0.06200737	0.05430856	0.05328030	0.04184133	0.04114582
Sr-85	514.00	0.05517066	0.05711657	0.04877780	0.05120697	0.04235739	0.04379312	0.03685692	0.03774325	0.02869107	0.02913435
Cs-137	661.65	0.04857978	0.04738230	0.04377848	0.04253235	0.03728337	0.03638052	0.03243930	0.03140515	0.02502113	0.02423617
Mn-54	834.83	0.04069078	0.03989370	0.03650413	0.03585100	0.03123218	0.03067029	0.02687218	0.02651508	0.02082585	0.02045791
Y-88	898.03	0.03736408	0.03779666	0.03387019	0.03397859	0.02930928	0.02906986	0.02529449	0.02514317	0.01947485	0.01939808
Co-60	1173.21	0.03178325	0.03101397	0.02841602	0.02791752	0.02394207	0.02388864	0.02071192	0.02069703	0.01598855	0.01596385
Co-60	1332.47	0.02919230	0.02822618	0.02600355	0.02542388	0.02197427	0.02175671	0.01899758	0.01886522	0.01448806	0.01454922
Y-88	1836.00	0.02103321	0.02226592	0.01922905	0.02008683	0.01666314	0.01719313	0.01446632	0.01493862	0.01118742	0.01151748

# Lab 11

不確かさの算出は下表のとおり

不確かさの要因	合成不確かさ		
	Cs-134	Cs-137	K-40
前処理	<b>0.570%</b>	<b>0.570%</b>	<b>0.570%</b>
秤量	0.00261%	0.00261%	0.00261%
厚さ	0.570%	0.570%	0.570%
均質性	考慮せず	考慮せず	考慮せず
校正	<b>2.72%</b>	<b>2.72%</b>	<b>2.65%</b>
厚さ	0.570%	0.570%	0.570%
校正用線源	2.40%	2.40%	2.40%
幾何条件	考慮せず	考慮せず	考慮せず
不感時間	考慮せず	考慮せず	考慮せず
測定系の変動	考慮せず	考慮せず	考慮せず
計数誤差	0.441%	0.441%	0.398%
放出比	0.588%	0.588%	0.000%
校正式のフィッティング	0.871%	0.871%	0.871%
サム効果補正	考慮せず	考慮せず	考慮せず
自己吸収補正	考慮せず	考慮せず	考慮せず
減衰補正	0.000029%	0.000029%	0.000029%
試料測定	<b>1.52%</b>	<b>1.03%</b>	<b>3.32%</b>
幾何条件	考慮せず	考慮せず	考慮せず
不感時間	考慮せず	考慮せず	考慮せず
測定系の変動	考慮せず	考慮せず	考慮せず
計数誤差	1.48%	0.84%	3.09%
放出比	0.328%	0.588%	1.218%
サム効果補正	考慮せず	考慮せず	考慮せず
自己吸収補正	考慮せず	考慮せず	考慮せず
減衰補正	0.00011%	0.0000033%	0.0099%
合成標準不確かさ	<b>3.16%</b>	<b>2.96%</b>	<b>4.28%</b>
拡張不確かさ (k=2)	<b>6.3%</b>	<b>5.9%</b>	<b>8.6%</b>

## Lab 14

・Cs134, Cs137溶液の放射能濃度決定に使用した点線源

①Eu152線源(JAERI Eu427 A-7):不確かさ $\pm 4\%$ ( $3\sigma$ )

②混合核種 $\gamma$ 線源(DKD製 GF-ML-M-7601 S/N: 1560-47):不確かさ $\pm 2.9\%$ ( $2\sigma$ )

(Am241, Cd109, Co57, Ce139, Hg203, Sn113, Sr85, Cs137, Y88, Co60を解析に使用。)

・Ge検出器表面から77mm位置に点線源を置いて各 $\gamma$ 線に対する検出効率を測定し

それらの値を指数関数の多項式で最小自乗フィットして検出効率曲線を作成。

検出効率曲線の推定不確かさは、実験値のばらつき具合から $\pm 2.0\%$ ( $1\sigma$ )と推定。

・Eu152, Co57, Ce139, Y88, Co60及びCs134の各 $\gamma$ 線に対しては、カスケードサムによる計数損失を計算し補正。

計算に使用する全効率は、積分法で計算したエネルギー依存曲線の絶対値をCs137で測定した実験値に合うように調整したものを使用。

・K40線源の放射能強度の不確かさは $\pm 1.1\%$ ( $1\sigma$ )。K40の同位体比の不確かさが主因。

・分析試料中の放射能強度は、自作した標準線源との間で $\gamma$ 線計数率を直接比較することで算出。

よって、体積線源に対する検出効率曲線を求める必要はなく、その不確かさは加算されない。

Cs134に対するカスケードサムの補正も、同じ形状の標準線源との間で $\gamma$ 線計数率を直接比較しているのでキャンセルされ、不確かさは加算されない。

ただし自己吸収の違いに起因する効率の違いによって試料間でカスケードサムの補正量が僅かに異なるため、その違いを計算し(1.0-1.6%)、補正。

この補正の不確かさは、1.0-1.6%の15%(0.15-0.24%)と推定。

・分析試料、Cs溶液、KOH溶液の密度は、それぞれ約0.35, 1.0, 1.16g/cm<sup>3</sup>。

それぞれの試料に対して $\gamma$ 線吸収係数を実測し、自己吸収割合を積分法で計算。

自己吸収の割合は各試料間で7.5-9.9%程度異なり、この違いを補正。

補正の不確かさは、この7.5-9.9%の5%(約0.5%)と推定。

・これらの不確かさ( $1\sigma$ )と計数誤差( $1\sigma$ )を誤差の伝播式を用いて合成した値( $1\sigma$ )を2倍して $k=2$ の拡張不確かさとした。



## Lab 16

### 不確かさの算出根拠

計算シート(1)の拡張不確かさ(k=2)は以下の①～③の式で求められる。

①放射能濃度及び誤差から算出した相対標準不確かさ(%) = 誤差(Bq/kg) ÷ 放射能濃度(Bq/kg) × 100

②標準線源のCs137の不確かさを合成して得られた最終的な相対標準不確かさ(%) =  $\sqrt{①^2 + (\text{標準線源のCs137の相対拡張不確かさ} \div 2)^2}$

③拡張不確かさ(k=2)(Bq/kg) = 放射能濃度(Bq/kg) × ② / 100 × 2

### 計算例

	エネルギー	放射能濃度(Bq/kg)	誤差(Bq/kg)	放射能濃度及び誤差から算出した相対標準不確かさ(%)	標準線源のCs137の相対拡張不確かさ(%)
Cs-134	604.66keV	233	3.719	$3.719 \div 233 \times 100 = 1.596$	4.7

相対標準不確かさ(標準線源の不確かさを加味した値)(%)  $\sqrt{(1.596^2 + (4.7/2)^2)} = 2.840$

拡張不確かさ(k=2) (Bq/kg)  $233 \times 2.840 / 100 \times 2 = 13.23$

## Lab 17

放射能測定用しいたけ標準物質(低濃度)の測定結果(報告書)

測定手順

- 1.空(密度ほぼ"0")及び水の入った U-8 容器の蓋の上にEu-152密封小線源(を置き  $\gamma$  線エネルギーと計数効率との関係を求める。
- 2.U-8 容器に放射性水溶液を入れて測定し  $\gamma$  線エネルギーと計数効率との関係を求める。
- 3.U-8 容器に KCl 水溶液を入れて測定し  $\gamma$  線エネルギーが1.461MeVの場合の計数効率を求める。
- 4."2"で求めた計数効率曲線を、"3"の1.461MeVの計数効率に合わせるために平行移動する。(密度"1"の場合の計数効率曲線とする。)
- 5."1"で求めた密度"1"の場合の計数効率曲線を"4"で求めた1.461keVの計数効率に合わせるために移動する。  
と同時に密度が"0"の場合の計数効率曲線を密度"1"の場合の計数効率曲線に合わせて平行移動する。(密度"0"の場合の計数効率曲線とする。)
- 6."4"と"5"の二つの計数効率曲線から内挿により試料密度に対する計数効率を求める(表1)。

表1 内挿により求めた試料密度と計数効率との関係

核種	$\gamma$ 線エネルギー keV	空容器	水	差	密度 / g/cm <sup>3</sup>				
					0.2	0.4	0.6	0.8	1.0
<b>Cs-134</b>	500	1.27	0.88	0.39	1.19	1.12	1.04	0.96	0.88
	<b>605</b>	<b>1.17</b>	<b>0.82</b>	<b>0.35</b>	<b>1.10</b>	<b>1.03</b>	<b>0.96</b>	<b>0.89</b>	<b>0.82</b>
<b>Cs-137</b>	<b>662</b>	<b>1.12</b>	<b>0.79</b>	<b>0.33</b>	<b>1.05</b>	<b>0.98</b>	<b>0.92</b>	<b>0.85</b>	<b>0.79</b>
<b>Cs-134</b>	700	1.08	0.77	0.32	1.02	0.96	0.89	0.83	0.77
	<b>795.9</b>	<b>1.00</b>	<b>0.72</b>	<b>0.29</b>	<b>0.95</b>	<b>0.89</b>	<b>0.83</b>	<b>0.77</b>	<b>0.72</b>
	900	0.92	0.67	0.26	0.87	0.82	0.77	0.72	0.67
	1000	0.85	0.62	0.23	0.80	0.76	0.71	0.67	0.62
	1100	0.78	0.58	0.20	0.74	0.70	0.66	0.62	0.58
	1200	0.72	0.54	0.18	0.69	0.65	0.61	0.58	0.54
	1300	0.67	0.50	0.16	0.63	0.60	0.57	0.54	0.50
	1400	0.62	0.47	0.15	0.59	0.56	0.53	0.50	0.47
<b>K-40</b>	<b>1460</b>	<b>0.59</b>	<b>0.45</b>	<b>0.14</b>	<b>0.56</b>	<b>0.53</b>	<b>0.50</b>	<b>0.48</b>	<b>0.45</b>

密度0.35の場合

核種	$\gamma$ 線エネルギー	密度0.2	密度0.4	計数効率(%)
Cs-134	605	1.1	1.03	1.048
Cs-137	662	1.05	0.98	0.998
K-40	1460	0.56	0.53	0.538

データ

しいたけ 粉状 高濃度 標準物質認証共同実験 2014-9-12

しいたけ 35 g  
100 mL  
5 cm  
密度 0.35

核種	Cs-134	Cs-137	K-40	K-40(BKG)
半減期(y)	2.065	30.04		
測定日	1-Sep-14	1-Sep-14	1-Sep-14	2-Jul-14
測定時間	260000	260000	260000	260000
net cps	0.059196154	0.14880641	0.012785	0.002248
1σ	0.000513588	0.000775897	0.000237	0.00011
			net cps 0.012785	

計数効率	1.048	0.998	0.538
γ ps	5.651	14.918	2.379
γ線放出率	0.976	0.851	0.107
Bq	5.789	17.530	22.230
Bq/kg	165.4	500.9	635.2

基準日	2013/12/1	2013/12/1
経過日数	274	274
減衰率	0.777	0.983

**Bq/kg 213 510 635**

Bq/減衰率 7.4 17.8

しいたけ(高濃度)試料の放射能(Bq/kg)を、日本アイソトープ協会の体積線源を用い計数効率を求め、キャンベラソフトを用いサンプイク補正、自己吸収補正を行って求めた得た値(一般法とする)と比較して低い値となる(下表参照)。認証値の統計計算には本法を採用。

	Cs-134	Cs-137	K-40
一般法	229	539	613
本法	210	509	540
本法/一般法	0.92	0.94	0.88

## Lab 18

### 不確かさの算出根拠

Cs-137

フロー	要因	示す値 測定値	タイプ	不確かさ	除数	標準 不確かさ	相対 不確かさ (%)
標準 物質の 純度	標準純度	95%(拡張)	正規分布 校正証明書 (k=2)	4.6	2	2.3	2.3
全ステッ プの要因	測定の不確か さ	537.5 Bq/kg	正規分布 実験	3.531	1	3.53	0.7
合成不確かさ(%)							2.39
拡張不確かさ(%) (k=2)							4.78

Cs-134

フロー	要因	示す値 測定値	タイプ	不確かさ	除数	標準 不確かさ	相対 不確かさ (%)
標準 物質の 純度	標準純度	95%(拡張)	正規分布 校正証明書 (k=2)	4.6	2	2.3	2.3
全ステッ プの要因	測定の不確か さ	223.8 Bq/kg	正規分布 実験	2.489	1	2.49	1.1
合成不確かさ(%)							2.55
拡張不確かさ(%) (k=2)							5.11

K-40

フロー	要因	示す値 測定値	タイプ	不確かさ	除数	標準 不確かさ	相対 不確かさ (%)
標準 物質の 純度	標準純度	95%(拡張)	正規分布 校正証明書 (k=2)	4.6	2	2.3	2.3
全ステッ プの要因	測定の不確か さ	634.6 Bq/kg	正規分布 実験	27.823	1	27.82	4.4
合成不確かさ(%)							4.95
拡張不確かさ(%) (k=2)							9.90

## 添付資料 6: Cs-134 と Cs-137 測定値の関係及び試験法による測定値の差異について

Cs-134 と Cs-137 の関係を 95%信頼楕円とともに図 6-1 に表示した(楕円は ISO 13528 に述べられたユーデン図の作成方法による)。標準線源について日本アイソトープ協会の核種混合アルミナ放射能標準ガンマ体積線源を使用した試験所を赤マークで示した。Lab 4 は点線源と形状依存性用には Cs-137 のみの体積線源を使用しているので区別して表示した。Cs-134 の標準線源を使用した試験所、Eu-152 点線源、牛肉標準物質を使用した試験所は別のマークで示した。

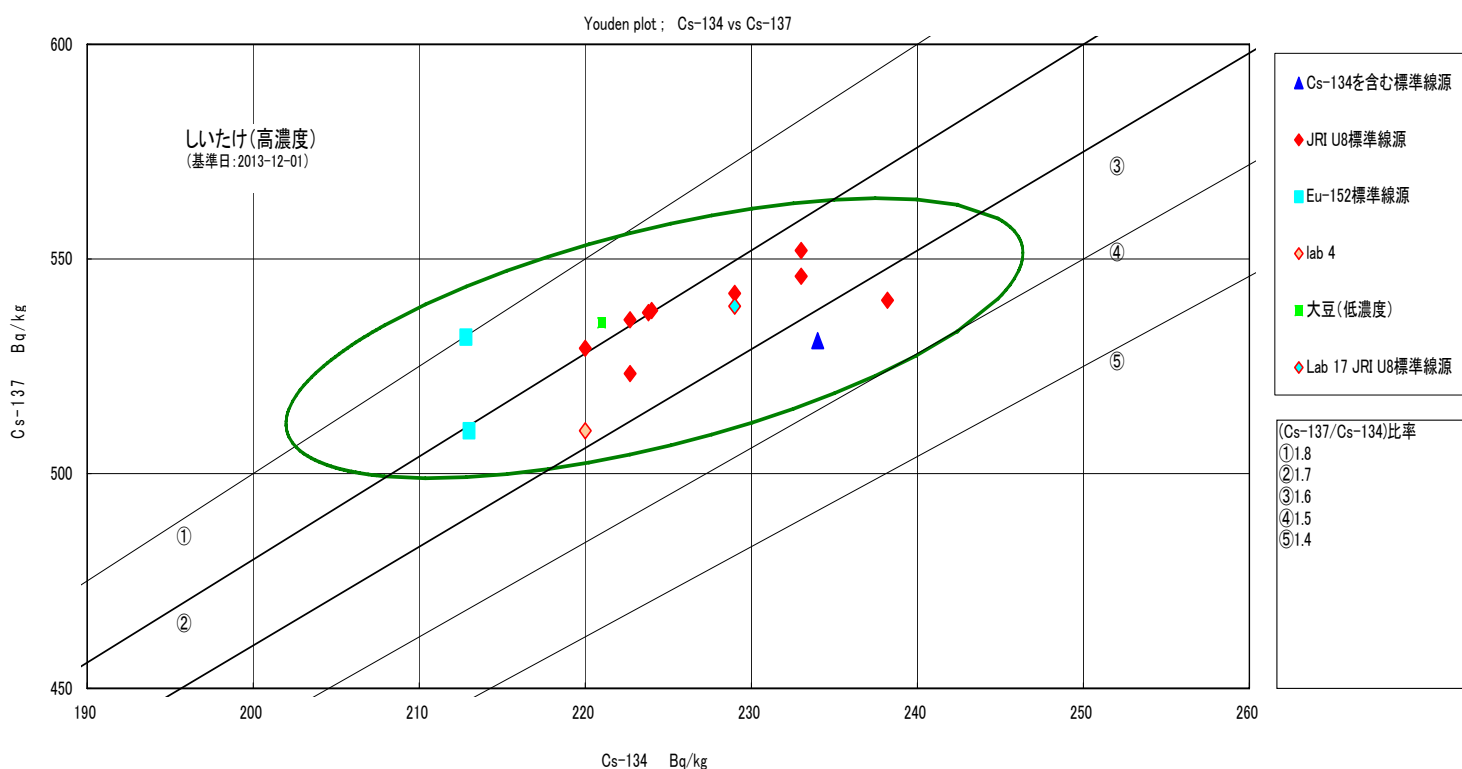
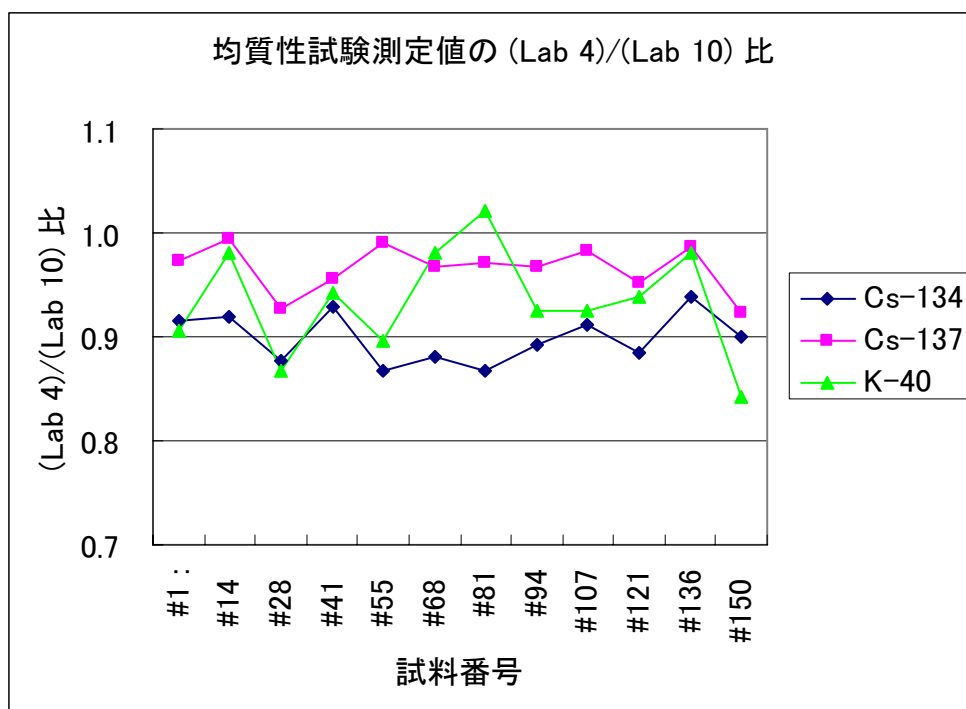


図 6-1 Cs-134 と Cs-137 測定値の比較 (しいたけ高濃度)

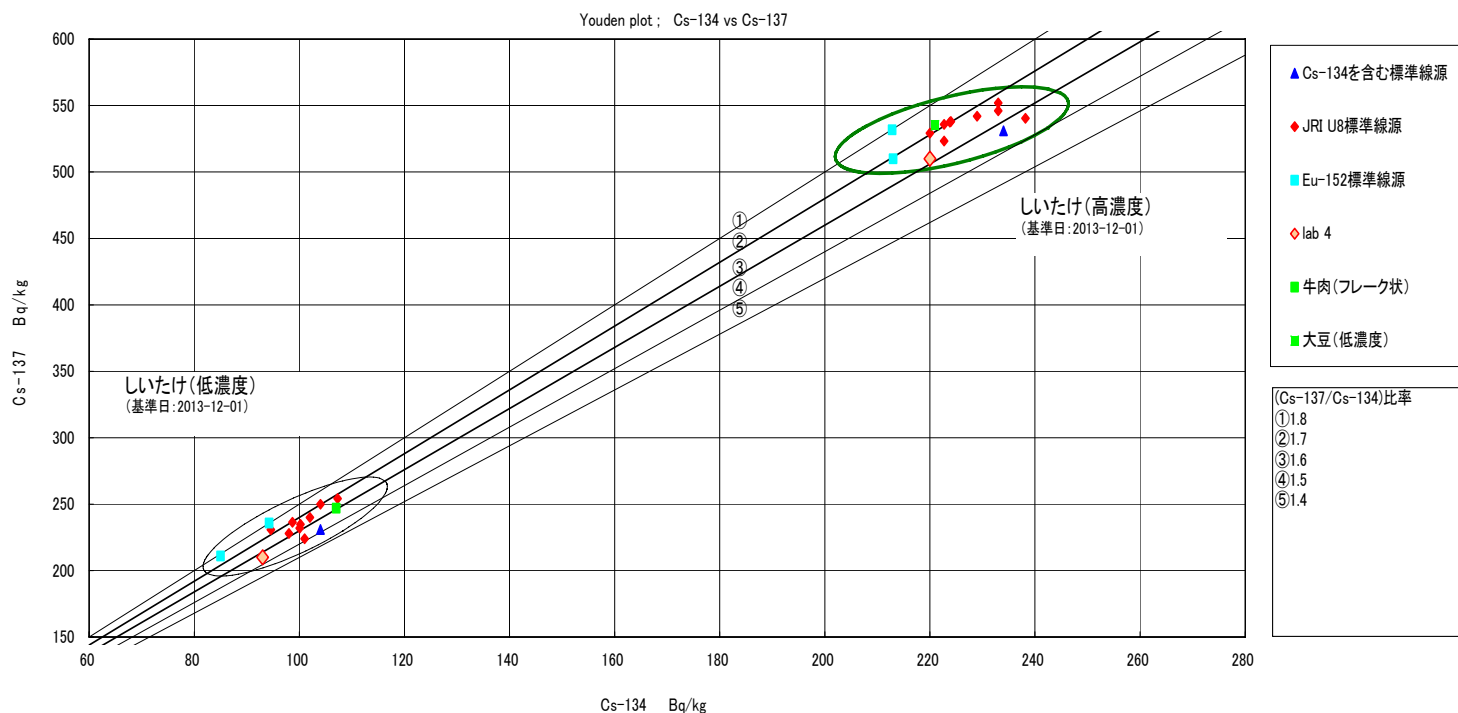
Eu-152 標準線源を用いた Lab 17 については、日本アイソトープ協会の体積線源を用い計数効率を求め、キャンベラソフトを用いサムピーク補正、自己吸収補正を行って求めた値(一般法とする)も標記した。但し、この値は認証値のための統計計算値には含めていない。

Lab 4 については、しいたけ低濃度と同じ傾向で低い値を示している。しいたけ低濃度については、均質性試験に使用した試料を測定し、均質性試験を行った Lab 10 と比較した結

果を図 6-2 に示す。



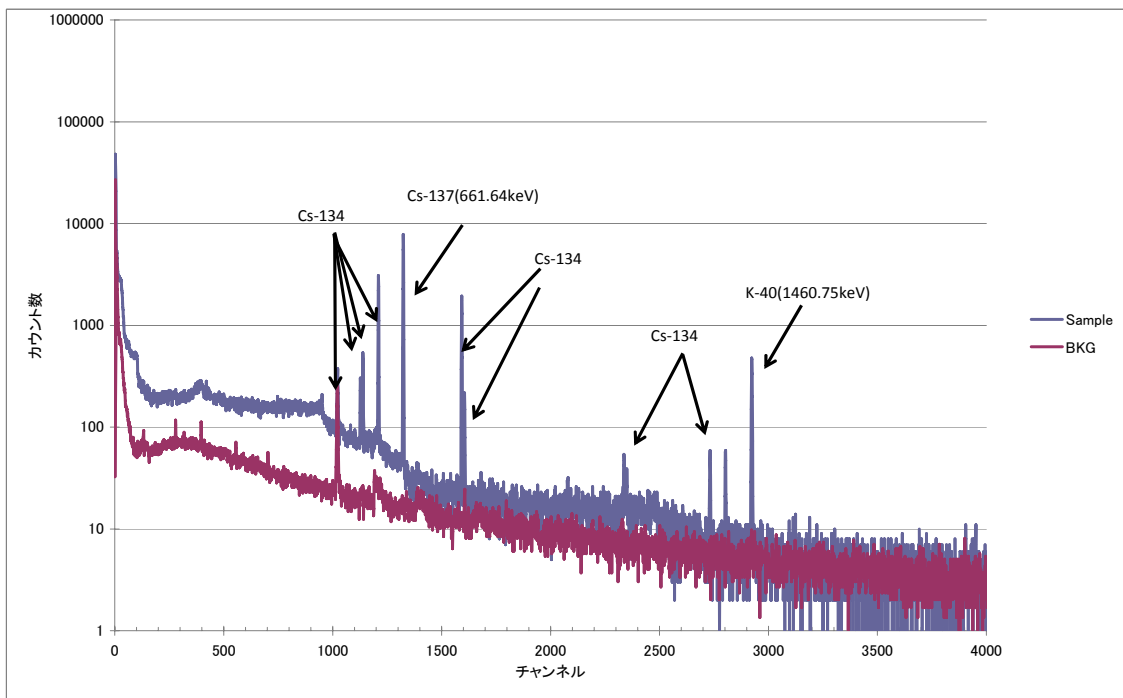
しいたけ試料の Cs-134 と Cs-137 の関係を 95%信頼楕円とともに、低濃度と高濃度を比較して図 6-3 に表示した。



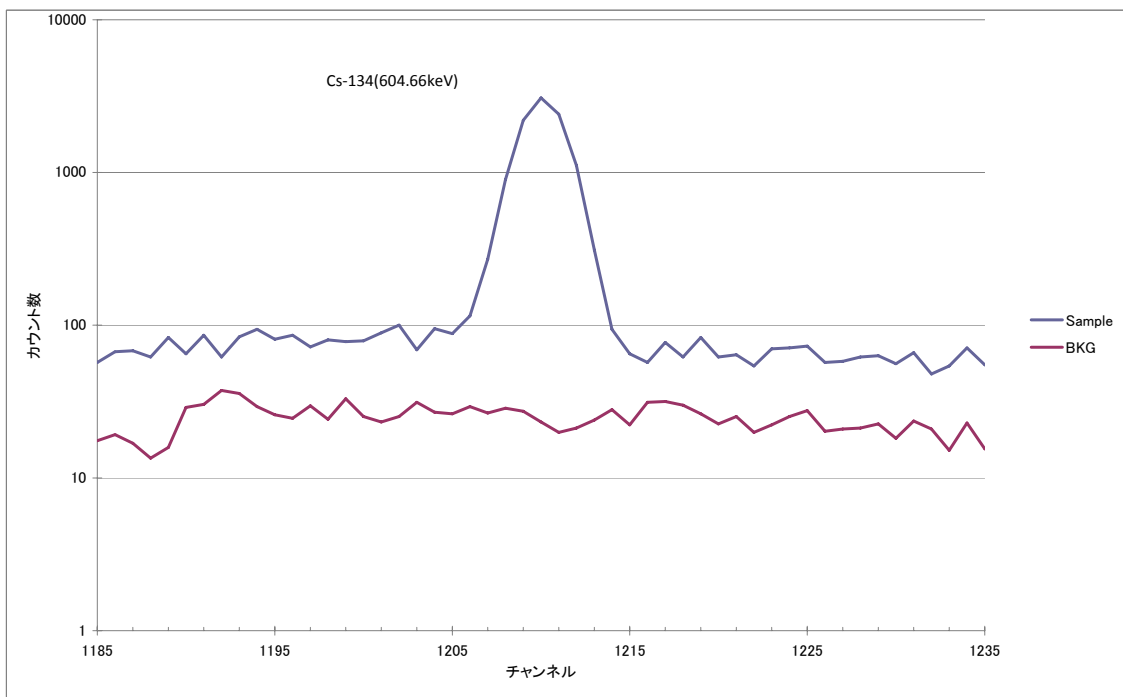
## 添付資料 7：報告されたγ線スペクトル例

3 試験所について、スペクトル全体と Cs-134, Cs-137, K-40 の部分を拡大した例を示す。

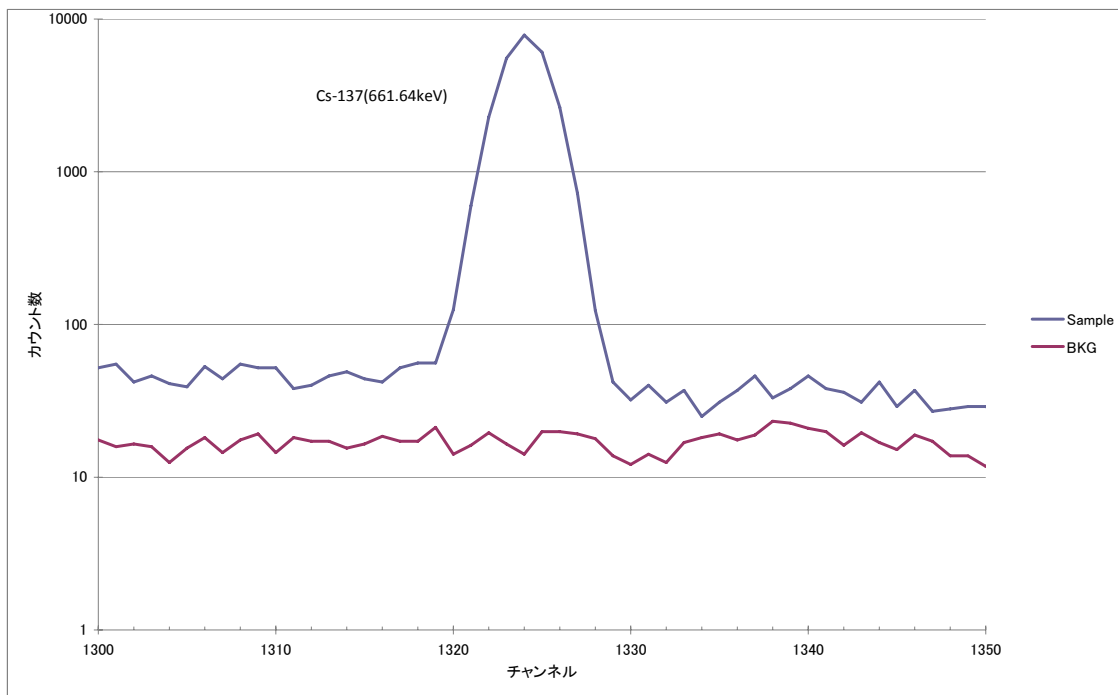
Lab 6 測定時間 試料あり：80 000 s (2014-07-09)  
 試料なし：237 600 s (80 000 s に換算表示) (2014-01-31)



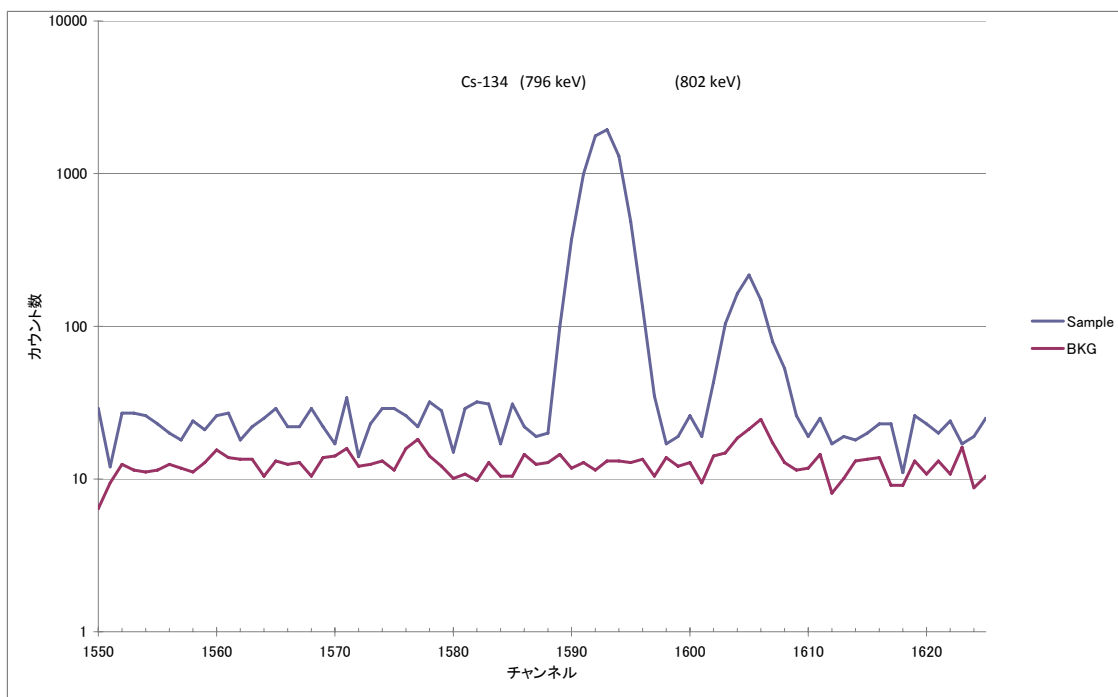
Cs-134 605 keV



Cs-137 662 keV

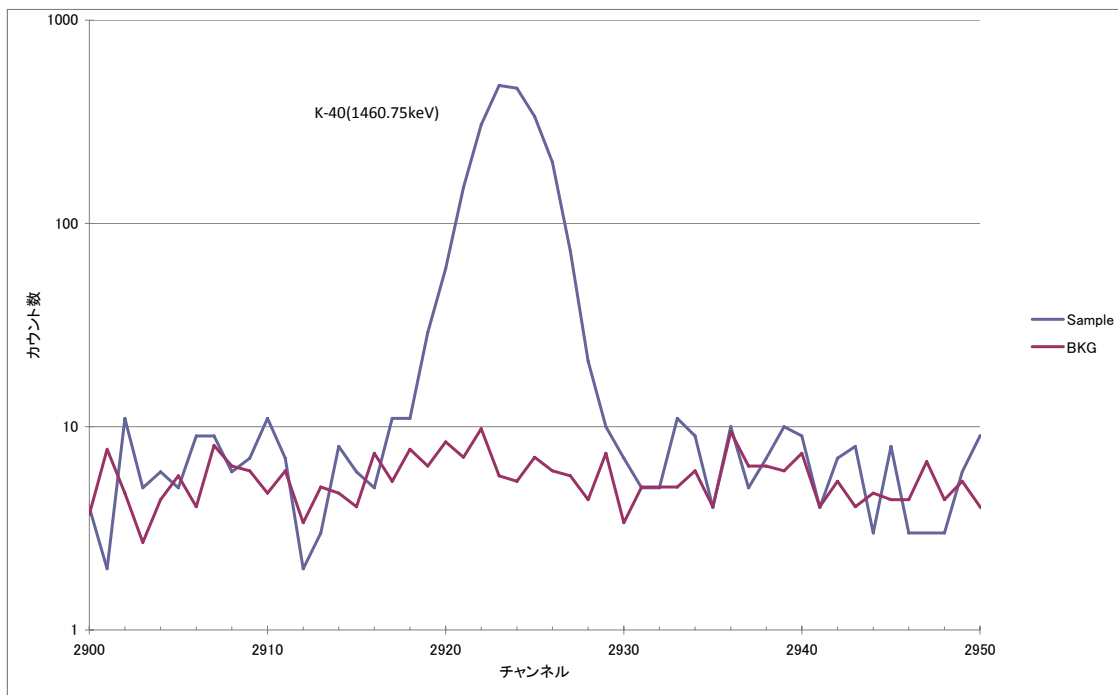


Cs-134 796 keV

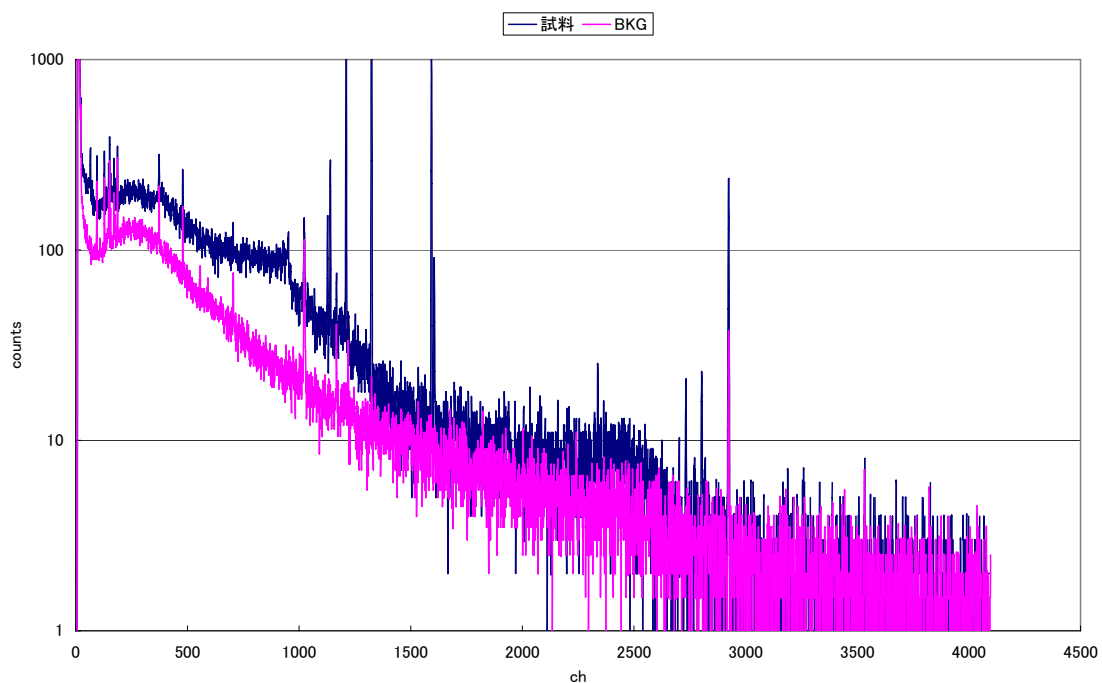




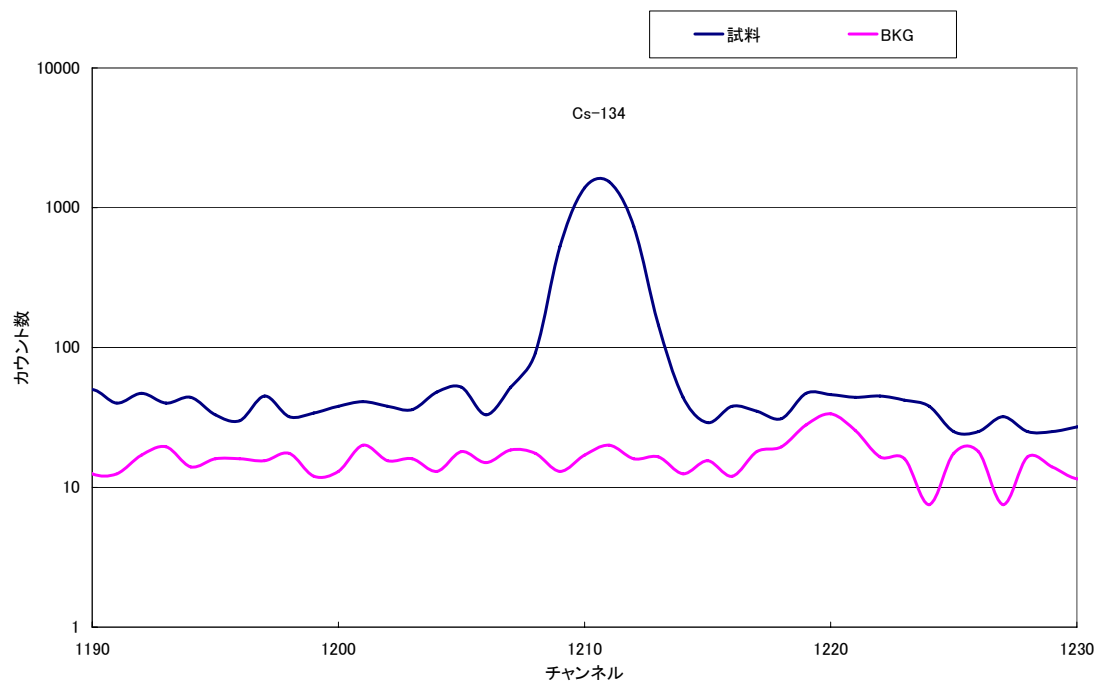
K-40 1460 keV



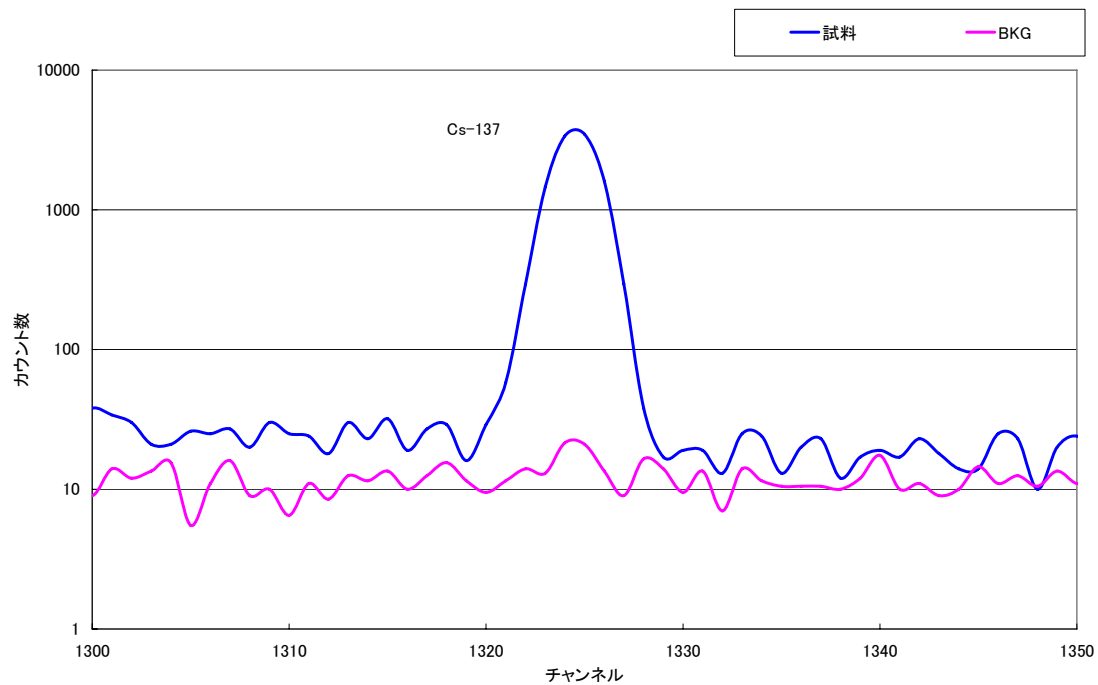
Lab 8 測定時間 試料あり : 43 200 s  
試料なし : 86 400 s (43 200 s に換算表示)



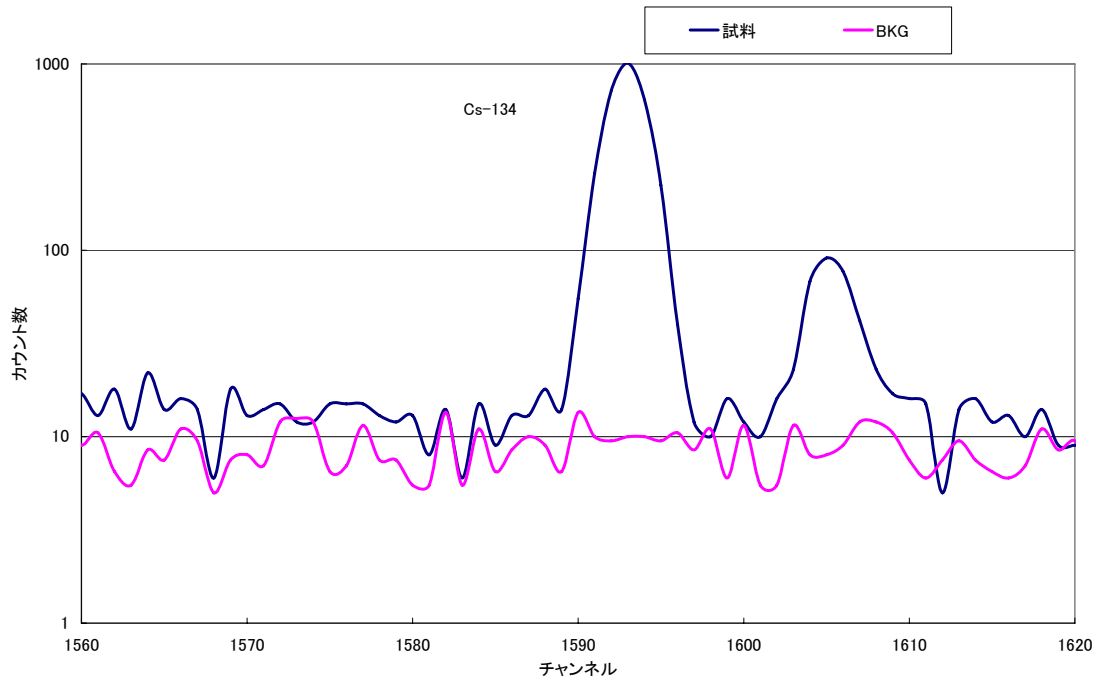
Cs-134 605 keV



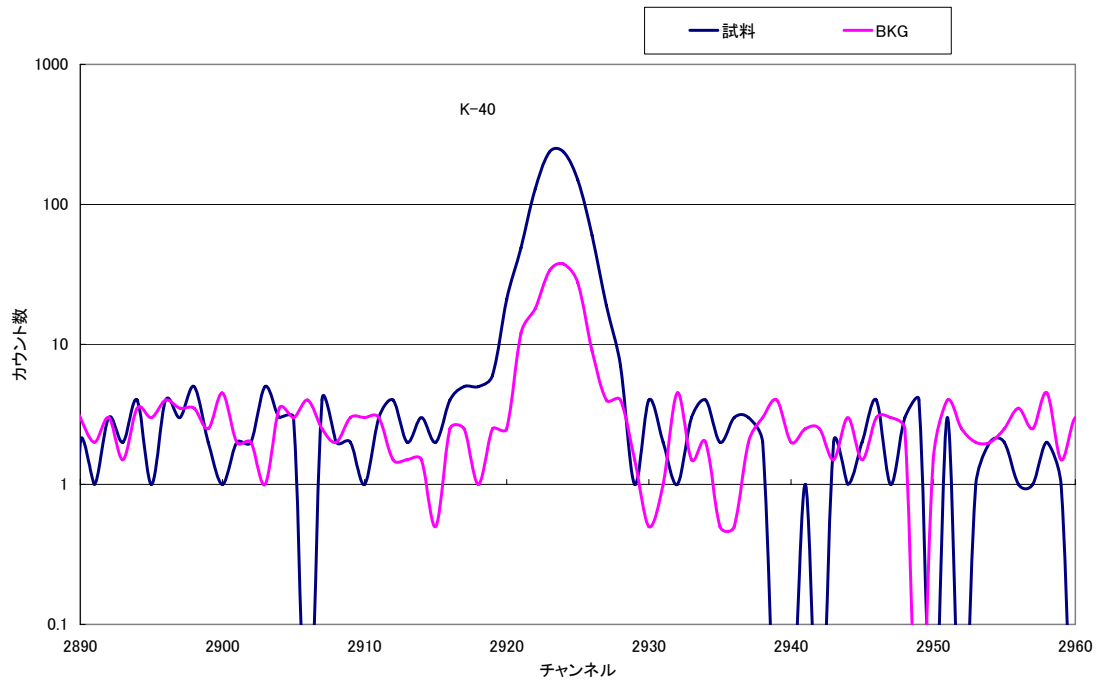
Cs-137 662 keV



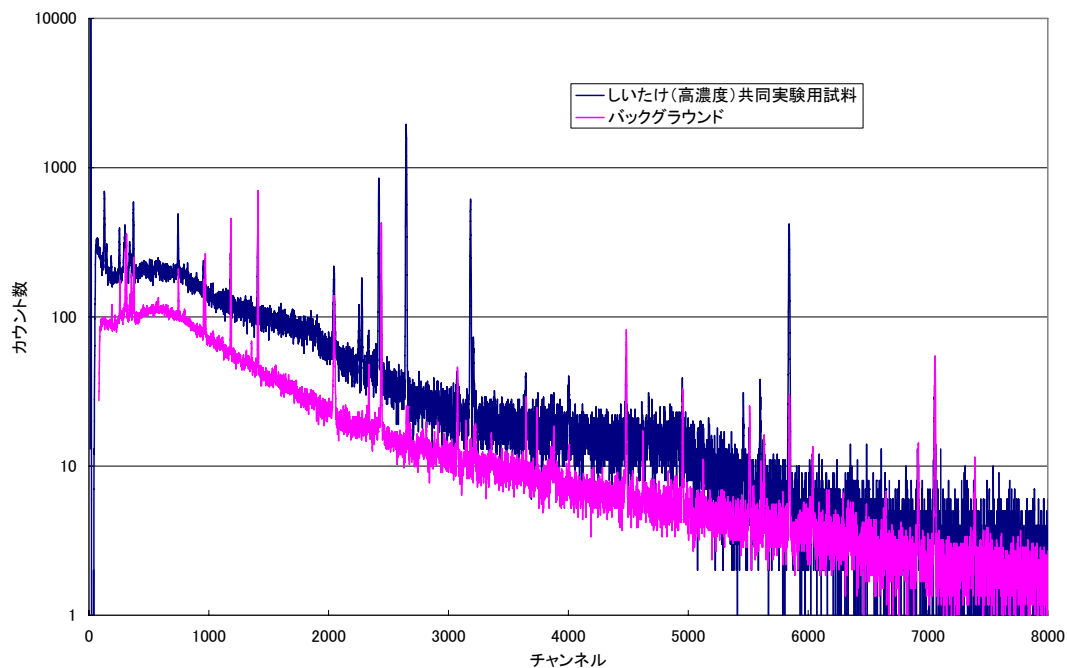
Cs-134 796 keV



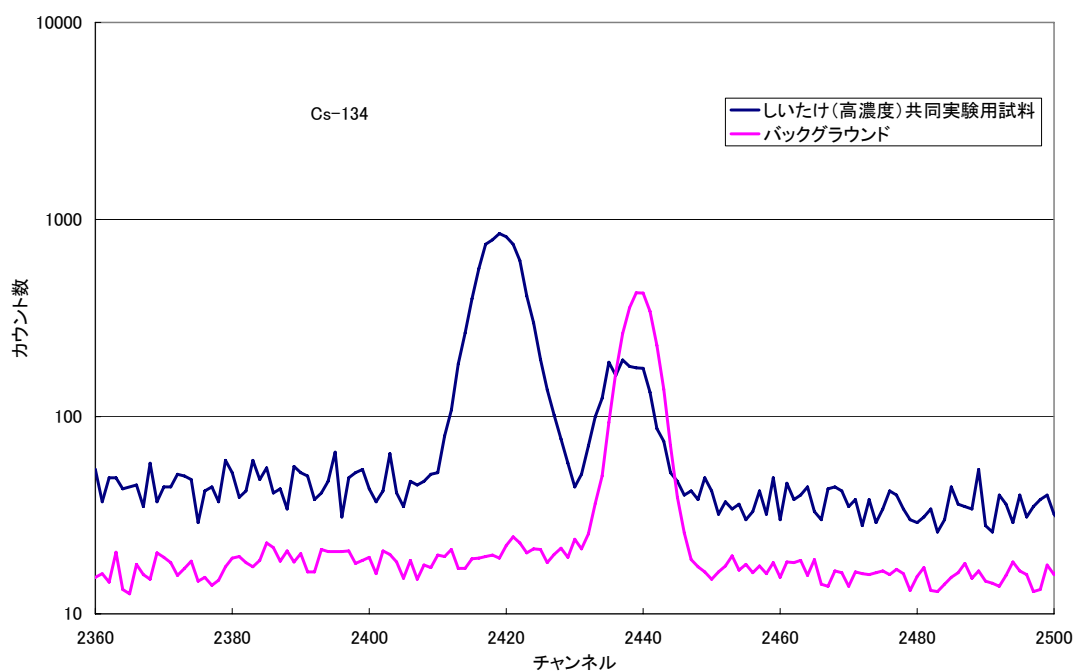
K-40 1460 keV



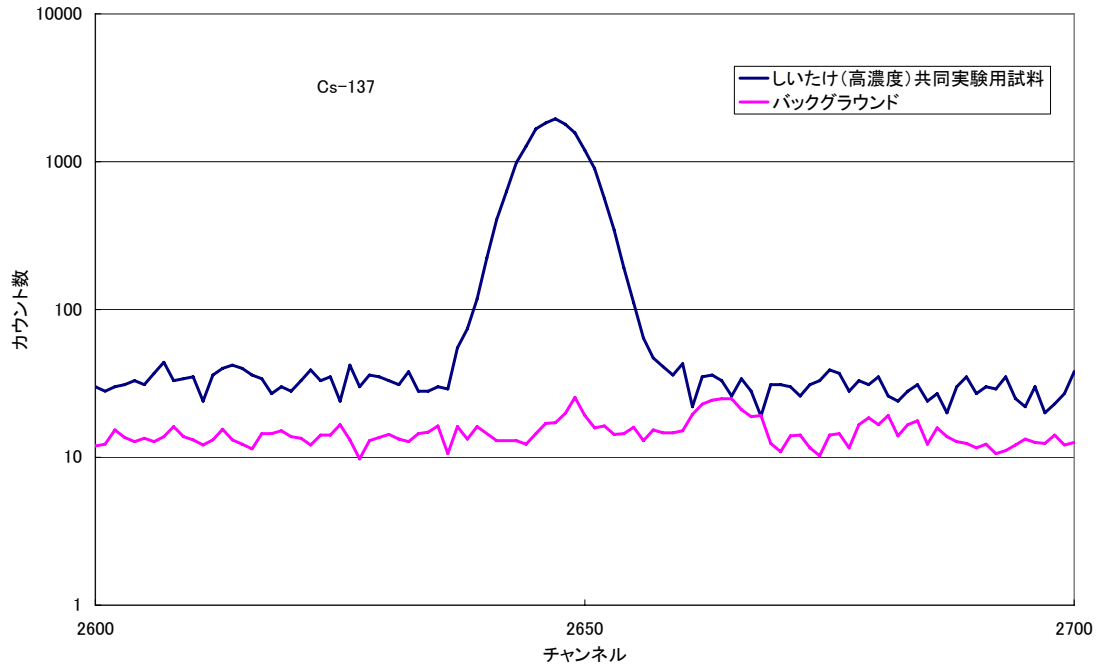
Lab 15 測定時間 試料あり : 87 331 s (2014-07-06)  
試料なし : 519 257 s (87 331 s に換算表示) (2014-08-21)



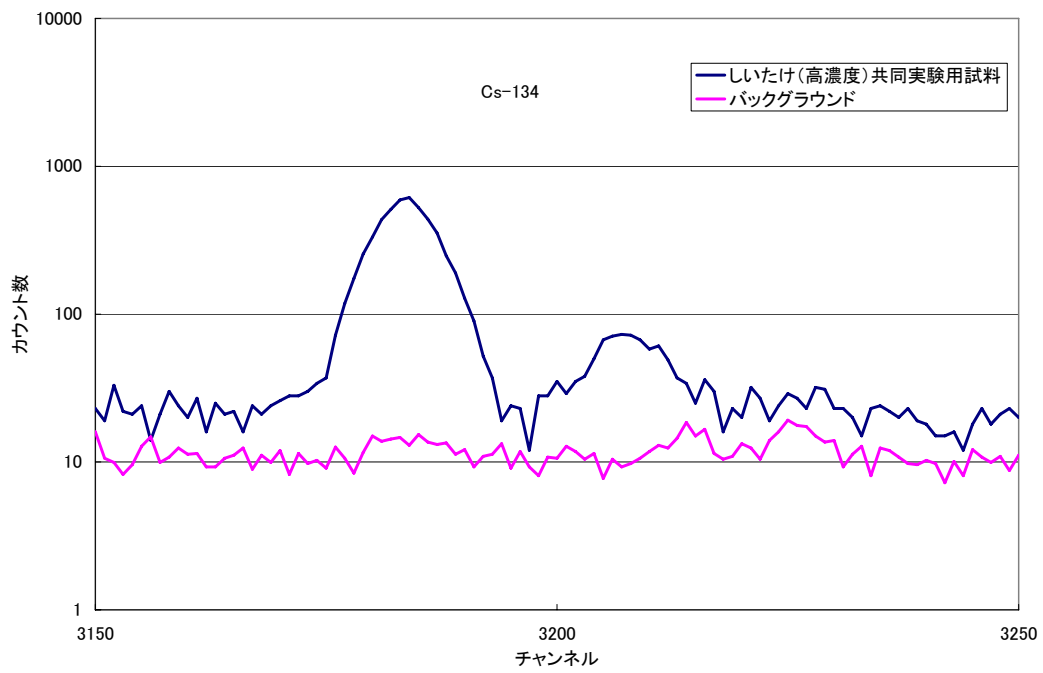
Cs-134 605 keV



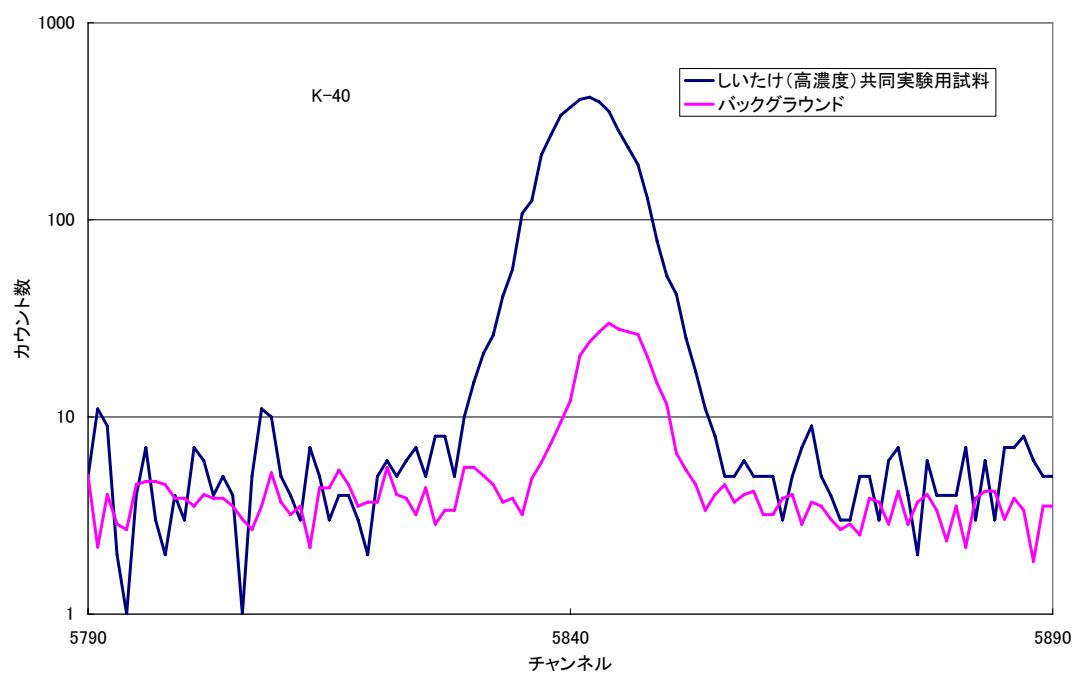
Cs-137 662 keV



Cs-134 796 keV



K-40 1460 keV



The Japan Society for Analytical Chemistry

## 日本分析化学会

## 認 証 書

## Certified Reference Material

JSAC 0774 (高濃度, U8 容器)  
 JSAC 0775 (高濃度, 100 mL 容器)  
 JSAC 0776 (高濃度, 1 L 容器)

しいたけ認証標準物質 (粉末状, 高濃度)  
 放射能分析用

本標準物質は, セシウム 134 ( $^{134}\text{Cs}$ ), セシウム 137 ( $^{137}\text{Cs}$ ), カリウム 40 ( $^{40}\text{K}$ ) の放射能濃度が認証された粉末状のしいたけ試料で, JIS Q 0035 (ISO Guide 35) に規定される共同実験方式を用いて認証値を決定したものである.

$\gamma$ 線スペクトロメトリーによる放射能分析の妥当性確認, 測定器の精度管理などに用いることができる.

認証値      基準日時 (日本時間)      2013 年 12 月 1 日      0 時 0 分 0 秒

標準物質 番号	成分	放射能濃度 <sup>注1)</sup> Bq/kg	拡張不確かさ ( $k=2$ ) <sup>注2)</sup> Bq/kg	室間再現 標準偏差 ( $SD$ ) <sup>注3)</sup> Bq/kg
JSAC 0774 JSAC 0775 JSAC 0776	$^{134}\text{Cs}$	225	15	8
	$^{137}\text{Cs}$	533	34	12
	$^{40}\text{K}$	633	50	40

注1) 認証値は, 水分を含んだ試料質量をもとに計算している.

注2) 拡張不確かさは, 合成標準不確かさに包含係数  $k=2$  を乗じたもので, 信頼の水準約 95 % に相当する.

注3) 室間再現標準偏差は, 認証値決定のために共同実験に参加した試験所の測定値の平均値を基準として求めた標準偏差である.

## 使用方法と使用上の注意

1. JSAC 0774 は, 試料 35.0 g を U8 容器(内径 48 mm)に充てんした後, 中蓋を入れ, 上蓋で

- 固定されている。容器を故意に振動・転倒させて試料を攪拌することを避ける。
2. U8 容器に充てんした試料の高さは 50 mm であるが、必要に応じて高さを測定することを推奨する。
  3. JSAC 0775 及び JSAC 0776 は適切な放射能測定用の容器に詰めかえて用いる。採取量は 35 g 以上とし、測定容器に詰めた試料の質量を精確に測定し、記録する。
  4. 測定容器に詰めかえる際は、あまり強く押し込まないように均質に充てんする。
  5. 本標準物質は、放射性核種を含むため取扱いに注意し、廃棄の際には関連法規を遵守する。

### 保管上の注意及び認証値の安定性

本標準物質は、デシケータに入れて冷暗所に保管する。

日本分析化学会では定期的に安定性試験を行い、その結果から有効保存期間及び有効保存期限を決めて、学会の会誌又はウェブサイト等に公表するので、参照すること。

### 標準物質の調製方法及び均質性評価

放射性物質で汚染された乾燥しいたけ及び汚染の無い乾燥しいたけを、それぞれ連続粉碎を行える製粉機及び電磁振動ふるい分け器を用いて粉末状に粉碎、1 mm 以下にふるい分けした後、十分な均質性が得られるように混合し、U8 容器(35.0 g)、100mL 容器 (約 35 g)、1L 容器 (約 350 g) に瓶詰めした。最後に、20 kGy の  $\gamma$  線照射による滅菌を行い候補標準物質とした。

均質性試験は 12 試料を用いて、 $^{134}\text{Cs}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  については放射能濃度の測定により、 $^{40}\text{K}$  については化学分析により実施した。評価された均質性は合成標準不確かさに含めた。

本試料は 105 °C、5 時間の乾燥により、約 6.4 %の質量の減少が認められた。

### 認証値の決定方法

認証値は、14 試験所による Ge 半導体検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリー<sup>文献1)</sup>による共同実験結果を JIS Q 0035 の手順に沿って統計的に処理して得られたものである。すなわち、U8 容器に充てんした 280 個の試料からほぼ等間隔に抜き取り参加試験所に配付した。認証値は 14 の報告値の平均値であり (棄却したデータはなかった)、拡張不確かさは、共同実験の平均値、検出効率校正、自己吸収補正、及び均質性試験から推定された標準不確かさを合成して包含係数を乗じて算出した。また、室間再現標準偏差 ( $SD$ , 報告値の標準偏差に等しい) を記載した。

### 共同実験の実施期間

共同実験は 2014 年 7 月から 9 月の間に行われた。

### 計量トレーサビリティ

測定器の校正には計量トレーサビリティが確保された手順が用いられた。すなわち、国家標準へのトレーサビリティが取れた標準線源が用いられた。なお、一部の試験所では  $^{40}\text{K}$  について KOH 又は KCl が標準に用いられた。

認証日付 2014 年 10 月 24 日



**認証値決定に協力した分析機関**

東京都市大学原子力研究所  
 東京都市大学工学部  
 明治大学 理工学部  
 京都大学原子炉実験所  
 東京大学アイソトープ総合センター  
 (公財)日本分析センター  
 (公社)日本アイソトープ協会  
 (一財)日本食品分析センター  
 (独)放射線医学総合研究所  
 (独)日本原子力研究開発機構  
 (独)農業環境技術研究所  
 エヌエス環境株式会社  
 株式会社環境総合テクノス  
 日本ハム株式会社中央研究所  
 以上 14 機関

**生産及び頒布機関**      公益社団法人 日本分析化学会

**調製・均質性試験機関**      環境テクノス株式会社      (北九州市戸畑区中原新町 2-4)  
 東京都市大学原子力研究所      (川崎市麻生区王禅寺 971)  
 埼玉大学大学院理工学研究科 (さいたま市桜区下大久保 255)

**認証責任者**      公益社団法人 日本分析化学会  
 標準物質委員会  
 委員長      上本 道久

作業委員会： 放射能標準物質作製委員会

	氏名	所属
委員長	平井 昭司	東京都市大学
委員	薬袋 佳孝	武蔵大学
委員	岡田 往子	東京都市大学
委員	米澤 伸四郎	(公財)日本国際問題研究所
委員	三浦 勉	(独)産業技術総合研究所
委員	植松 慶生	(公財)日本適合性認定協会
委員	岡田 章	(株)東芝環境ソリューション
事務局	柿田 和俊	(公社)日本分析化学会
事務局	小島 勇夫	(公社)日本分析化学会

## 受託事業 放射能環境標準物質開発委員会

	氏名	所属
リーダー	葉袋 佳孝	武蔵大学
サブリーダー	岩本 浩	環境テクノス(株)
委員	米澤 仲四郎	(公財)日本国際問題研究所
委員	三浦 勉	(独)産業技術総合研究所
委員	渋谷 雅美	埼玉大学大学院
委員	荒川 史博	日本ハム株式会社中央研究所
委員	真田 哲也	北海道科学大学
委員	高貝 慶隆	福島大学
アドバイザー	前山 健司	(公財)日本分析センター
アドバイザー	山田 崇裕	(公社)日本アイソトープ協会
事務局	柿田 和俊	(公社)日本分析化学会
事務局	小島 勇夫	(公社)日本分析化学会

本認証書の詳細については開発成果報告書を参照のこと。

文献1) 平成4年改訂 放射能測定シリーズ No.7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」

問合せ先

公益社団法人 日本分析化学会

〒141-0031 東京都品川区西五反田1丁目26-2

五反田サンハイツ 304号

Tel. 03(3490)3351

Fax 03(3490)3572

ホームページ : <http://www.jsac.or.jp/srm/srm.html>

e-mail : [crmpt@ml.jsac.or.jp](mailto:crmpt@ml.jsac.or.jp)

**付記:**本認証標準物質は、独立行政法人科学技術振興機構による研究成果展開事業（先端計測分析技術・機器開発プログラム）として受託し、2014年度に開発されたものである。ただし、当該委託費には、認証した標準物質の保存・頒布等に要する費用（管理費を含む）は含まれていない。